

SÉRIE A, N° 3146

N° D'ORDRE :

4018

---

# THÈSES

PRÉSENTÉES

A LA FACULTÉ DES SCIENCES  
DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

ROBERT PICCA

---

1<sup>re</sup> THÈSE. — “LA DÉSACTIVATION DES NOYAUX GLACOGÈNES D'IODURE D'ARGENT”.

2<sup>e</sup> THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 19 Avril 1958 devant la Commission d'examen.

MM. COULOMB. *Président.*

QUENEY.. }  
BRICARD.. } *Examineurs.*

---



Digitized by the Internet Archive  
in 2026



*Cet ouvrage a été tiré à 650 exemplaires sous le n° 4 de la série Sciences physiques dans les Travaux de l'Institut scientifique chérifien, et à 150 exemplaires comme thèse de doctorat de la Faculté des Sciences de l'Université de Paris*

SÉRIE A, N° 3146

N° D'ORDRE :

4018

---

# THÈSES

PRÉSENTÉES

## A LA FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES PHYSIQUES

PAR

**ROBERT PICCA**

---

1<sup>re</sup> THÈSE. — "LA DÉSACTIVATION DES NOYAUX GLACOGÈNES D'IODURE D'ARGENT".

2<sup>e</sup> THÈSE. — PROPOSITIONS DONNÉES PAR LA FACULTÉ.

Soutenues le 19 Avril 1958 devant la Commission d'examen.

MM. COULOMB. *Président.*

QUENEY.. }  
BRICARD.. } *Examineurs.*



# FACULTÉ DES SCIENCES DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS

## PROFESSEURS

*Doyen*..... J. PÈRES.

|                  |                                                     |                     |                                               |
|------------------|-----------------------------------------------------|---------------------|-----------------------------------------------|
| G. JULIA.....    | T Analyse supérieure et Algèbre supérieure.         | Mlle CAUCHOIS.....  | T Chimie physique.                            |
| FOCH.....        | T Mécanique physique et expérimentale.              | THELLIER.....       | T Physique du Globe.                          |
| PAUTHENIER.....  | T Électrotechnique générale.                        | L'HERITIER.....     | T Génétique.                                  |
| DE BROGLIE.....  | T Théories physiques.                               | GRIVET.....         | T Radio-électricité.                          |
| PRENANT.....     | T Anatomie et Histologie comparées.                 | PONCIN.....         | T Mécanique des fluides.                      |
| GARNIER.....     | T Géométrie supérieure.                             | DUBREIL.....        | T Arithmétique et théorie des nombres.        |
| PÈRES.....       | T Mécanique des fluides et applications.            | QUELET.....         | T Chimie organique.                           |
| LAUGIER.....     | T Physiologie générale.                             | CAGNIARD.....       | T Géophysique appliquée.                      |
| M. CURIE.....    | T Physique (S.P.C.N.).                              | CHAMPETIER.....     | T Chimie macromoléculaire.                    |
| M. CURIE.....    | T Physique (S.P.C.N.).                              | CUVILLIER.....      | T Géologie structurale et Géologie appliquée. |
| BARRABÉ.....     | T Géologie structurale et Géologie appliquée.       | JUNG.....           | T Pétrographie.                               |
| G. DARMOIS.....  | T Calcul des probabilités et Physique mathématique. | TRILAT.....         | T Microscopie et diffraction électronique.    |
| J. BOURCART..... | T Géographie physique et Géologie dynamique.        | WIEMANN.....        | T Chimie organique et structurale.            |
| PLANTEFOL.....   | T Botanique.                                        | JACQUINOT.....      | T Spectroscopie et Physique céleste.          |
| GRASSÉ.....      | T Évolution des êtres organiques.                   | VASSY.....          | T Physique de l'atmosphère.                   |
| PRÉVOST.....     | T Chimie organique.                                 | DESTOUCHES.....     | T Théories physiques.                         |
| BOULIGAND.....   | T Application de l'analyse à la Géométrie.          | M. PRUVOST.....     | T Géologie.                                   |
| CHAUDRON.....    | T Chimie appliquée.                                 | AMIEL.....          | T Chimie générale (P.C.B.).                   |
| WYART.....       | T Minéralogie.                                      | HOCART.....         | T Minéralogie.                                |
| TEISSIER.....    | T Zoologie.                                         | J.-P. MATHIEU.....  | T Physique (P.C.B.).                          |
| MANGENOT.....    | T Biologie végétale.                                | COUTEAUX.....       | T Biologie animale (P.C.B.).                  |
| P. AUGER.....    | T Physique quantique et Relativité.                 | MAY.....            | T Biologie animale (P.C.B.).                  |
| MONNIER.....     | T Physiologie des fonctions.                        | CHOQUET.....        | T Calcul différentiel et intégral.            |
| PIVETEAU.....    | T Paléontologie.                                    | FELDMANN.....       | T Biologie (P.C.B.).                          |
| ROCARD.....      | T Physique (B.N.S.).                                | GUINIER.....        | T Physique générale (P.C.B.).                 |
| H. CARTAN.....   | T Mathématiques (B.N.S.).                           | JOST.....           | T Physiologie comparée.                       |
| LAFFITTE.....    | T Chimie générale.                                  | FORTET.....         | T Calcul des probabilités.                    |
| FAVARD.....      | T Mécanique générale.                               | SCHWARTZ.....       | T Méthodes mathématiques de la Physique.      |
| COULOMB.....     | T Physique du Globe.                                | CHOUARD.....        | T Physiologie végétale.                       |
| Mlle COUSIN..... | T Biologie animale (S.P.C.N.).                      | MALAYARD.....       | T Aviation.                                   |
| CHRÉTIEN.....    | T Chimie minérale.                                  | BRELOT.....         | T Calcul différentiel.                        |
| P. DRACH.....    | T Zoologie.                                         | NORMANT.....        | T Chimie organique (P.C.B.).                  |
| KASTLER.....     | T Physique.                                         | BENARD.....         | T Chimie (P.C.B.).                            |
| ÉPHERUSSE.....   | T Génétique.                                        | BUVAT.....          | T Botanique (E.N.S.).                         |
| WURMSER.....     | T Biologie physico-chimique.                        | DUGUE.....          | T Statistiques mathématiques.                 |
| RIVIÈRE.....     | T Géologie (S.P.C.N.).                              | GELOSO.....         | T Chimie (S.P.C.N.).                          |
| GAUTHERET.....   | T Biologie végétale (P.C.B.).                       | SOULAIRAC.....      | T Psychophysiologie.                          |
| LUCAS.....       | T Recherches physiques.                             | ULRICH.....         | T Physiologie végétale.                       |
| A. THOMAS.....   | T Biologie cellulaire.                              | MARÉCHAL.....       | T Optique théorique et appliquée.             |
| ARNULF.....      | T Optique appliquée.                                | KIRRMANN.....       | T Théories chimiques.                         |
| M. MORAND.....   | T Enseignement de Physique.                         | CHADEFAUD.....      | T Botanique.                                  |
| SOLEILLET.....   | T Physique.                                         | DESTRIAUX.....      | T Physique (M.P.C.).                          |
| FORTIER.....     | T Mécanique expérimentale des fluides.              | Mlle LE BRETON..... | T Physiologie générale.                       |
| DANJON.....      | T Astronomie.                                       | SALEM.....          | T Mathématiques générales.                    |
| LAFORTE.....     | T Physique générale et Radio-activité.              | LELONG.....         | T Mathématiques générales.                    |
| JANET.....       | T Mécanique analytique et Mécanique céleste.        | DEVILLERS.....      | T Anatomie et Histologie comparées.           |
| PETIT.....       | T Biologie maritime.                                | EHRESMANN.....      | T Topologie algébrique.                       |
| QUENEY.....      | T Météorologie et dynamique atmosphérique.          | FRANÇON.....        | T Physique (S.P.C.N.).                        |
| GALLIEN.....     | T Embryologie.                                      | GLANGEAUD.....      | T Géographie physique et Géologie dynamique.  |
| EICHORN.....     | T Biologie végétale (P.C.B.).                       | GODEMENT.....       | T Mathématiques (M.P.C.).                     |
| DE CUGNAC.....   | T Biologie végétale (P.C.B.).                       | PISOT.....          | T Calcul des probabilités.                    |
|                  |                                                     | ROCH (E.).....      | T Géologie.                                   |
|                  |                                                     | SCHATZMANN.....     | T Astrophysique.                              |
|                  |                                                     | TERMIER.....        | T Paléontologie stratigraphique.              |

|                   |   |                                       |                 |                                       |
|-------------------|---|---------------------------------------|-----------------|---------------------------------------|
| ZAMANSKY.....     | T | Mathématiques générales.              | LAMOTTE.....    | Zoologie (E.N.S.).                    |
| JOLIOU.....       | T | Physique nucléaire et Radio-activité. | MICHEL.....     | T Chimie (S.P.F.N.).                  |
| LENNUIER.....     |   | Physique (P.C.B.).                    | OLMER.....      | T Énergétique générale.               |
| RIZET.....        |   | Génétique.                            | ROUAULT.....    | T Physique (Enseignement).            |
| Mme TONNELAT..... |   | Théories physiques.                   | GAUTHIER.....   | T Mécanique appliquée.                |
| DIXMIER.....      |   | Mathématiques (M.P.C.).               | BARCHEWITZ..... | Chimie physique.                      |
| SOUGHAY.....      |   | Chimie générale.                      | BROSSEL.....    | Physique atomique.                    |
| AIGRAIN.....      |   | Physique (P.C.B.).                    | BUSER.....      | Biologie animale (P.C.B.).            |
| BRUSSET.....      |   | Chimie minérale.                      | CAMUS.....      | Biologie végétale (P.C.B.).           |
| M. LÉVY.....      |   | Physique théorique.                   | CASTAING.....   | Physique générale.                    |
| LENORMANT.....    |   | Physiologie.                          | CURIEN.....     | Minéralogie et Cristallographie.      |
| Mme CHAIX.....    |   | Chimie biologique.                    | MOYSE.....      | Physiologie végétale.                 |
| Mme HUREL-PY..... |   | Biologie végétale (P.C.B.).           | NOIROT.....     | Évolution des êtres organisés.        |
| PIAUX.....        |   | Chimie (P.C.B.).                      | PANNETIER.....  | Chimie (P.C.B.).                      |
| BRUN.....         |   | Mécanique expérimentale des fluides.  | POSSOMPES.....  | Biologie animale (P.C.B.).            |
| LEDERER.....      | T | Chimie biologique.                    | PULLMANN.....   | Chimie théorique.                     |
| Mme DUBREIL.....  | T | Mathématiques.                        | TEILLAC.....    | Physique nucléaire et Radio-activité. |
| Mme LELONG.....   | T | Mathématiques (E.N.S.).               | TONNELAT.....   | Biologie physico-chimique.            |
| BELLAIR.....      | T | Géologie (S.P.C.N.).                  | VILLE.....      | Econométrie.                          |
| COTTE.....        | T | Physique (M.P.C.).                    | WILLEMART.....  | Chimie (P.C.B.).                      |
| J.-E. DUBOIS..... | T | Chimie (S.P.C.N.).                    |                 |                                       |

Secrétaire général..... C. MONIER.

# SOMMAIRE

|                                                                                                                                              | Pages |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| INTRODUCTION. — HISTORIQUE.....                                                                                                              | 1     |
| CHAPITRE PREMIER.                                                                                                                            |       |
| Expériences réalisées suivant la technique des fils d'araignée.....                                                                          | 9     |
| Étude de la surfusion de gouttelettes d'eau dans une cuve de faible dimension .....                                                          | 9     |
| Expériences réalisées dans une chambre froide de grande capacité.                                                                            | 18    |
| CHAPITRE II.                                                                                                                                 |       |
| Étude de l'activité de fumées libres d'iodure d'argent.....                                                                                  | 35    |
| Évolution du nombre de cristaux induits par injection d'air pollué dans un brouillard surfondu.....                                          | 37    |
| Décroissance, en fonction du temps, du nombre de noyaux contenus dans une enceinte fermée.....                                               | 41    |
| Étude de l'activité de fumées libres d'iodure d'argent soumises préalablement à des condensations de vapeur d'eau.....                       | 44    |
| CHAPITRE III.                                                                                                                                |       |
| Étude de l'activité glaçogène de l'iodure d'argent déposé sur lame de verre.....                                                             | 50    |
| 1 <sup>o</sup> Activité glaçogène de fumées d'iodure d'argent recueillies sur lame de verre.....                                             | 51    |
| 2 <sup>o</sup> Activité glaçogène de cristaux d'iodure d'argent déposés sur lame de verre.....                                               | 57    |
| CHAPITRE IV.                                                                                                                                 |       |
| Essais d'interprétation de l'évolution des propriétés glaçogènes de l'iodure d'argent.....                                                   | 59    |
| Première hypothèse : l'iodure d'argent contient des éléments solubles.                                                                       | 61    |
| Deuxième hypothèse : l'eau (ou la glace) dépose au cours de l'évaporation (ou de la sublimation) des substances étrangères sur le noyau..... | 66    |
| Troisième hypothèse : les centres actifs du noyau seraient altérés par suite de leur contact avec l'eau.....                                 | 70    |
| CONCLUSION.....                                                                                                                              | 73    |
| RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....                                                                                                             | 75    |

## INTRODUCTION – HISTORIQUE

Le problème de la modification des nuages a occupé depuis ces dernières années une place de plus en plus importante dans le domaine de la physique des nuages.

L'idée séduisante de pouvoir provoquer artificiellement la pluie a suscité de nombreuses initiatives aussi bien sur le plan de la recherche pure que dans celui de l'exploitation commerciale à plus ou moins grande échelle. Les résultats spectaculaires proclamés par certains *rainmakers* a levé un enthousiasme qui a fait tomber rapidement la notion de « pluie artificielle » dans le domaine public.

Parmi les techniques utilisées pour modifier les nuages, nous n'envisageons que la plus importante par le nombre d'essais tentés, à savoir : l'ensemencement des nuages à l'aide de fumée d'iodure d'argent. Le rôle de cet élément est basé sur une interprétation du mécanisme des précipitations qu'ont proposée BERGERON (1928-1935) et FINDEISEN (1938). Ces auteurs font intervenir la présence de cristaux de glace dans les nuages surfondus. La tension de vapeur d'eau en équilibre avec les gouttelettes composant le nuage étant supérieure à la tension de vapeur de la glace, les cristaux croîtront aux dépens des gouttes et tomberont à travers le nuage. Ces auteurs ont calculé que le transport de l'eau des gouttes doit s'effectuer en quelques minutes. Lorsque les cristaux se sont assez développés, leur vitesse de chute peut être supérieure à celle du courant ascensionnel qui permet la stabilité du nuage. La croissance des cristaux dans un nuage de caractères donnés est d'autant plus importante que la durée de leur séjour au sein du nuage est grande, cette durée augmentant avec la vitesse du courant ascendant. De plus, la coalescence des cristaux de glace avec les gouttelettes liquides peut augmenter la vitesse de croissance des cristaux, concurremment avec le phénomène de sublimation directe de vapeur d'eau. Ainsi un nuage d'eau liquide peut se transformer peu à peu en nuage de particules glacées. La chute des particules vers le sol dépendra essentiellement de la vitesse du

courant ascendant à la limite inférieure du nuage. La précipitation sera liquide ou solide suivant la taille des particules glacées et la température des couches d'air qu'elles traverseront au cours de leur chute. Si, pour certains, l'apparition de la glace dans l'atmosphère peut se faire spontanément aux basses températures ( $-30$  à  $40$  °C), on admet généralement que le développement de la glace aux plus hautes températures ( $-10$  à  $-20$  °C) nécessite la présence de noyaux de congélation actifs à la température du nuage. L'état actuel de nos connaissances sur les noyaux atmosphériques ne nous permet pas de savoir avec certitude s'il s'agit de noyaux de sublimation sur lesquels la phase vapeur viendrait se condenser directement sous forme solide ou de noyaux de congélation qui amorceraient la congélation de l'eau après l'avoir fixée sur eux. Nous adopterons avec FOURNIER D'ALBE le terme de « noyau glaçogène » pour désigner ces noyaux qui, quel que soit leur mode d'action, sont capables de provoquer ou de favoriser l'apparition de la glace.

Ces noyaux glaçogènes ont été étudiés et dénombrés par de nombreux physiciens; de récentes expériences (SOULAGE, 1956, WARNER, 1957) ont montré la réalité de ces noyaux; leur concentration (variable avec le lieu et le temps) serait de l'ordre de 1 à 100 par litre pour des températures d'action comprises entre  $-10$  et  $-30$  °C.

C'est pour suppléer à l'absence ou à l'insuffisance de ces noyaux atmosphériques naturels que l'on a songé à provoquer les précipitations en diffusant dans l'atmosphère des noyaux produits artificiellement et possédant des propriétés glaçogènes.

C'est en 1947 que les propriétés glaçogènes de l'iodure d'argent ont été découvertes au laboratoire de recherches de la General Electric Cie. VONNEGUT (1947) rapporte toutefois que les premiers essais de congélation d'un brouillard surfondu à  $-20$  °C par des cristaux d'iodure d'argent n'ont pas permis de déceler une action quelconque de cet élément, alors que de la poudre d'iodure de plomb donnait lieu à la formation d'un certain nombre de cristaux de glace dans le nuage (en nombre d'ailleurs très inférieur au nombre total de particules d'iodure de plomb utilisé).

Par la suite, des fumées d'iodure d'argent produites en chauffant des cristaux de cet élément sur un filament donnèrent lieu à la formation d'un très grand nombre de noyaux et leur efficacité fut observée jusqu'à une température de  $-4$  °C.

L'échec des premières expériences utilisant l'iodure d'argent fut attribué au fait que l'échantillon était contaminé par des sels solubles. Par ailleurs, VONNEGUT signale que l'efficacité des particules d'iodure d'argent en tant que noyau glaçogène, dépend de la dimension des particules.

D'autres éléments ont depuis été essayés comme agents glaçogènes mais l'iodure d'argent est resté jusqu'à présent le plus important et celui qui a donné lieu à des expériences à très grande échelle. Étant donné le

grand nombre d'inséminations effectuées, il n'est pas possible de rapporter ici tous les travaux traitant de la production artificielle de la pluie <sup>(1)</sup>.

Rappelons seulement que les brillants résultats proclamés au cours des dernières années par quelques entrepreneurs commerciaux n'ont pas été confirmés par les différents groupes de chercheurs.

S'il n'est pas douteux que des précipitations qui ne se produiraient pas naturellement ont pu être obtenues par insémination de certains nuages locaux, les spécialistes réunis en différents congrès <sup>(2)</sup> ont dû admettre que les analyses statistiques portant sur des exploitations à grande échelle n'ont pas conduit aux résultats escomptés. Il n'est donc pas possible, pour l'instant, de conclure d'une façon décisive à une augmentation des précipitations due aux ensemencements. Malgré quelques tentatives encourageantes, il est certain que le problème de la précipitation provoquée est loin d'être complètement élucidé.

L'efficacité des inséminations semble dépendre de très nombreux facteurs, en particulier :

— de l'état du nuage inséminé : il est certain, par exemple, que la température du nuage doit être inférieure à celle du seuil d'activité des noyaux émis, mais il est possible que cette condition ne soit pas suffisante et que le mécanisme de précipitation proposé par BERGERON et FINDEISEN ne soit pas applicable à tous les systèmes nuageux (en particulier, leur théorie ne peut expliquer les pluies abondantes provenant de nuages exclusivement liquides) :

— du mode d'ensemencement (générateur au sol ou au sein même du nuage) dont dépend la diffusion des noyaux;

— de l'efficacité glaçogène des particules.

Nous nous limiterons, dans ce mémoire, à ce dernier problème. Certains auteurs ont, en effet, mis en évidence des cas où l'iodure d'argent semblait perdre son pouvoir glaçogène.

L'équipe de physiciens de la General Electric composée de REYNOLDS, S. E. HUME, VONNEGUT et SCHAEFER (1951) signalait l'effet désactivant de la lumière solaire et de la lumière ultraviolette sur les propriétés glaçogènes de l'iodure d'argent en fumées. Ces auteurs montraient que le nombre de noyaux actifs était réduit de 90 à 99 % par l'exposition d'une heure au soleil.

---

(1) On trouvera une liste des principaux travaux par pays dans la publication de L. DUFOUR : *Peut-on faire pleuvoir artificiellement?* Inst. Royal. Météorol. (Belgique), série B (1952), n° 4.

(2) Colloque de Zürich (4-6 octobre 1954); conférence de Tucson (10-12 avril 1956).

INN (1951) a trouvé également une décroissance du pouvoir glaçogène par exposition à la lumière ultraviolette, la destruction pratiquement complète de la propriété étant acquise au bout de dix à vingt minutes d'exposition aux radiations de longueur d'onde inférieure à 4 300 Å émises par une lampe à vapeur de mercure distante de 20 à 30 cm de l'échantillon.

De ses observations, il ressort que le phénomène photolytique serait réversible.

Ces expériences furent reprises par VONNEGUT et R. NEUBAUER (1951) qui ne retrouvèrent pas ces ordres de grandeur, leurs nouveaux essais de désactivation montrant qu'au bout d'une heure d'exposition à la lumière ultraviolette, il restait encore de 40 à 100 % de noyaux actifs. Ils attribuaient cette différence de résultats au fait que des traces d'impuretés existant, soit dans l'atmosphère, soit dans les noyaux, auraient une influence profonde sur l'effet désactivant de la lumière.

De nouveau, S. E. REYNOLDS, W. HUME et M. McWHIRTER (1952) ont précisé que le nombre de noyaux actifs à 20 °C décroissait approximativement de deux ordres de grandeur après une exposition d'une heure à la lumière solaire. Ils ne retrouvèrent pas la réversibilité du phénomène comme l'avait annoncée INN. Par contre, l'addition de traces d'ammoniac dans le brouillard surfondu peut, selon eux, régénérer le pouvoir glaçogène de particules préalablement désactivées. A noter que si l'addition d'ammoniac a lieu avant l'exposition à la lumière, la vitesse de décroissance du nombre de noyaux actifs est accrue et le pouvoir glaçogène n'est plus régénéré par une addition ultérieure d'ammoniac.

BIRSTEIN (1952), étudiant l'effet de la vapeur d'eau adsorbée sur la désactivation photolytique de l'iodure d'argent, a trouvé qu'une adsorption préalable de vapeur d'eau par le noyau le protégeait de la destruction de son pouvoir glaçogène. Deux explications sont proposées : soit que la vapeur d'eau adsorbée empêche une réduction de l'iodure d'argent par la lumière, soit que cette réduction existe quand même mais que les produits de réduction, adsorbés à la surface de l'iodure, continuent d'adsorber et d'orienter les molécules d'eau.

Dans une étude ultérieure, BIRSTEIN (1954) montre que la préadsorption de composés organiques ou minéraux (ammoniac en particulier) fait décroître le pouvoir adsorbant de l'iodure d'argent pour la vapeur d'eau et cause ainsi une diminution de son pouvoir glaçogène.

BOLTON et QURESHI (1954) ne constatent aucune action mesurable de la lumière solaire et de l'humidité de l'air ambiant. Par contre, la pression et surtout la température de l'air du récipient dans lequel est introduite la fumée d'iodure d'argent joueraient un rôle essentiel dans le processus de désactivation. C'est ainsi qu'ils donnent une désactivation de 90 % des noyaux en quatre-vingts minutes à 15 °C, en dix heures à — 10 °C et en plus de deux jours à — 30 °C.

H. DESSENS (1954 *a*) formulait des doutes au sujet de ces résultats et supposait que les désactivations constatées par BOLTON et QURESHI étaient dues à un regroupement ou à une précipitation des noyaux actifs sur les parois du récipient qui les contenait, ce qui expliquait l'influence de la pression et de la température par l'accroissement des chocs moléculaires qui accélère l'élimination de noyaux par coalescence ou précipitation. WARNER et BIGG (1956) venaient confirmer ce point de vue par des expériences qui ne décelaient aucune désactivation par la température, ni par la pression.

Par ailleurs, l'étude des noyaux de congélation atmosphérique a montré le caractère souvent aléatoire de leurs propriétés glaçogènes.

RAU (1944) indiquait que les noyaux de congélation perdaient progressivement leur activité au cours de réchauffements et refroidissements successifs de gouttes dont ils induisaient la congélation, mais que les noyaux retrouvaient leur activité après un séchage. Ces résultats ne purent être retrouvés par CWILONG (1947 *a*) ni par BREWER et PALMER (1951). Il paraît très probable que les expériences de RAU ont été perturbées par des vapeurs d'alcool ou d'acétone provenant du réfrigérant et qui seraient venues contaminer les gouttes, ce qui expliquerait leur régénération par séchage.

BAYARDELLE (Mlle) (1954) a constaté elle aussi une décroissance progressive de la température de congélation de gouttes d'eau à mesure que des congélations successives intervenaient et suggère que ce phénomène est dû à la sédimentation des noyaux de congélation. Le processus de sédimentation n'est pas explicité et il est également possible qu'il s'agisse d'une détérioration des noyaux de congélation par un amoindrissement de l'aire des sites actifs qui n'agissent plus ainsi qu'à des températures de plus en plus basses.

SOULAGE (1953, 1955 *a*, 1956) a également observé une décroissance de l'activité glaçogène des noyaux de congélation après une ou plusieurs actions successives. Il distingue, pour les noyaux naturels qu'il a étudiés, plusieurs formes de désactivation :

1° Les noyaux, après avoir agi rapidement au cours des premières expériences (soit sans condensation apparente d'eau, soit dans une petite goutte) exigent ensuite qu'une quantité plus importante d'eau se fixe sur le noyau pour que la congélation s'amorce.

2° Après avoir agi successivement à des températures croissantes jusqu'à une température critique à partir de laquelle le noyau n'agit plus, on ne retrouve plus son activité aux mêmes températures que précédemment; sa température critique d'action peut être abaissée d'une dizaine de degrés.

Mais une nouvelle action à plus basse température peut lui rendre parfois ses propriétés initiales.

3° Dans d'autres cas, après plusieurs congélations, les noyaux cessent d'agir définitivement à leur température critique.

Les processus possibles proposés (rôle d'une substance hygroscopique dans le noyau, détérioration de la couche superficielle) ne permettent pas toujours de comprendre parfaitement ce phénomène dont les causes demeurent encore mystérieuses.

MARUYAMA (1955) est « sceptique » sur la théorie selon laquelle un noyau ayant déjà servi, agit une seconde fois après la sublimation de la glace.

JAFFRAY et MONTMORY (1956) étudiant la congélation de l'eau surfondue sur des surfaces d'iodure de plomb indiquent que l'action orientante de l'iodure de plomb se perd, pour les faces qui ont déjà donné une première épitaxie, lorsqu'on veut en reproduire une seconde. Ils constatent une diminution progressive du nombre de cristaux de glace orientés à partir de la température critique d'action de  $-9^{\circ}\text{C}$  et il semble, en outre, qu'un site qui a déjà servi une fois ne puisse être capable de produire, à la même température, un second cristal de glace.

Pour notre part, c'est fortuitement que nous avons observé au cours d'essais de glaciation d'eau surfondue à l'aide d'iodure d'argent que cet élément pouvait, dans certaines conditions, ne pas manifester de propriétés glaçogènes. Nous avons donc été amené à rechercher les causes possibles de désactivation et à vérifier leur effet inhibiteur sur les noyaux d'iodure d'argent. Nous avons vu que les conclusions des différents auteurs sur cette question étaient le plus souvent incertaines et quelquefois contradictoires. Il nous est apparu nécessaire qu'une étude expérimentale de la désactivation des noyaux glaçogènes soit entreprise pour tenter de lever le doute qui planait jusqu'à présent sur la réalité du phénomène. C'est dans ce but que ce travail a été entrepris.

L'étude de l'activité glaçogène des noyaux d'iodure a été faite ici suivant trois techniques différentes : soit en captant les noyaux à l'aide de fils d'araignée, soit sous forme de fumées libres, soit en déposant l'iodure sur une lame de verre.

Nous exposerons tour à tour les expériences réalisées suivant les différentes techniques d'après un plan qui correspond à peu près à l'ordre chronologique. Nous envisagerons ensuite les diverses interprétations susceptibles d'expliquer l'évolution des propriétés glaçogènes.

### **Modes de préparation de l'iodure d'argent.**

L'iodure d'argent a été étudié, soit sous forme de fumée, soit sous forme de cristaux du commerce.

Les fumées d'iodure d'argent ont été obtenues de deux manières :

1<sup>o</sup> En portant à l'incandescence des pastilles de charbon de bois imprégnées d'iodure d'argent. Ces pastilles, dont les caractéristiques ont été mises au point par BIDAULT (1953), sont obtenues à partir de charbon d'encensoir

et imprégnées d'iodure d'argent, soit par immersion dans une solution acétonique d'iodure d'argent à 5 % et d'iodure de sodium, soit par mélange intime avec de l'iodure d'argent commercial finement pulvérisé. L'ignition est obtenue par contact avec une résistance chauffante; la combustion peut-être activée en dirigeant sur les pastilles un jet d'air comprimé.

2° En sublimant directement des cristaux d'iodure d'argent du commerce par chauffage à l'aide d'une résistance.

Les émissions de fumée sont faites dans une hotte de chimiste qui peut être rendue hermétique et dont le volume est d'environ 0,9 m<sup>3</sup>.

\* \* \*

Il m'est agréable pour clore cette introduction, d'exprimer mes remerciements à ceux qui, à des titres divers, m'ont aidé à la réalisation de ce travail.

Ma reconnaissance va tout d'abord à M. DESSENS qui m'a orienté et conseillé au cours de ces recherches; qu'il veuille bien trouver ici l'expression de ma profonde gratitude.

J'adresse également mes vifs remerciements à M. le Professeur FERT qui a aimablement accepté d'examiner des fils d'araignée au microscope électronique.

— à M. MAURET, professeur au C.E.S.S., à Rabat, qui m'a permis de réaliser la diffraction de rayons X de certains échantillons d'iodure d'argent;

— au Dr RODIER, chef du Service de toxicologie à l'Institut d'Hygiène, à Rabat, qui a mis à ma disposition les ressources de son laboratoire de spectrophotométrie.

J'ai eu également recours à la compétence de M. le Professeur TRILLAT que je remercie pour l'intérêt qu'il a bien voulu prendre à mes recherches.

Ma gratitude va également à M. PASQUALINI, directeur du C.E.S.S., auprès duquel j'ai toujours trouvé la précieuse aide matérielle nécessaire à la poursuite de mes travaux.



## CHAPITRE PREMIER

# EXPÉRIENCES RÉALISÉES SUIVANT LA TECHNIQUE DES FILS D'ARAIGNÉE

### ÉTUDE DE LA SURFUSION DE GOUTTELETTES D'EAU DANS UNE CUVE DE FAIBLES DIMENSIONS

Avant de contrôler l'efficacité des noyaux fixés sur les fils d'araignée, il est apparu nécessaire d'étudier au préalable le comportement de gouttelettes d'eau pure immobilisées sur des fils fraîchement préparés (PICCA, 1954).

L'étude de la surfusion de gouttelettes d'eau a été faite par de nombreux chercheurs; soit sous forme de nuages surfondus obtenus en chambre froide (SCHAEFER, 1946; CWILONG, 1947; FOURNIER D'ALBE, 1949), soit sous forme de gouttes en contact avec une surface solide (HEVERLY, 1949; DORSCH et HACKER, 1950), soit encore sous forme de gouttelettes en suspension entre deux liquides non miscibles à l'eau (E. K. BIGG, 1953); LAFARGUE (1950) utilisait ce dernier procédé tout en maintenant les gouttes sur des fils d'araignée.

Il est probable qu'une gouttelette en équilibre entre deux couches de liquides hydrofuges, comme l'huile de silicone, est mieux à l'abri de tout germe extérieur de congélation, mais notre but étant d'étudier l'activité glaçogène de noyaux captés par des fils d'araignée, il n'aurait pas été possible de mettre sans risques les fils en contact avec des gouttes se trouvant en suspension au sein même du liquide. De plus, l'immobilisation de gouttelettes dans l'air permet de les observer dans des conditions voisines de celles rencontrées dans l'atmosphère.

Le dispositif qui va être décrit utilise des fils d'araignée (1) tendus sur un support porte-grille de forme cylindrique et percé d'un trou de 1 mm de diamètre.

Le mode de préparation de telles grilles a été décrit par H. DESSENS et C. FERT (1951).

---

(1) Des fils de plexigum ont été également utilisés; aucune différence appréciable n'a été constatée entre le comportement de gouttelettes maintenues par l'un ou l'autre fil.

Il est essentiel de recouvrir le support d'une couche de graisse de silicone avant d'enrouler le fil si l'on veut éviter des congélations prématurées qui sont amorcées par celles se produisant sur le porte-grille.

Les fils sont placés dans une enceinte de dimensions réduites (environ 150 cm<sup>3</sup>) refroidie par un manchon extérieur. Le réfrigérant est constitué par de l'acétone dans laquelle on ajoute de la neige carbonique. La grandeur de la chambre froide et le mode de refroidissement ont été choisis de manière à pouvoir faire varier aisément et rapidement la température. Le passage de 0 à - 20 °C par exemple peut être effectué en un minimum de temps de 3 à 4 mn.

Les gouttelettes d'eau sont produites en faisant arriver de l'air humide dans l'enceinte préalablement refroidie, soit par insufflation directe au moyen de la bouche, soit à l'aide d'un générateur de vapeur d'eau.

### DESCRIPTION DE LA CHAMBRE FROIDE

La cuve centrale (*fig. 1 et 1 bis*) est constituée par un cylindre de 8 cm de diamètre et de 3 cm de haut; elle est entourée latéralement et sur ses deux bases par le réfrigérant sauf aux deux ouvertures nécessaires l'une au passage de l'objectif du microscope, l'autre à l'emplacement du condenseur. Pour ne pas causer un réchauffement des particules par un rapprochement exagéré de la monture de l'objectif, on se limite à un objectif 10 ×. Le support porte-grille est introduit dans la cuve en soulevant momentanément l'objectif, et posé sur le condenseur pour l'observation microscopique. Le grossissement pour la vision oculaire est de 125. Les microphotographies sont prises à l'aide d'une lampe-flash qui peut prendre la place de la lampe éclairant normalement le microscope. Une colonne d'une solution anticalorique est interposée sur le trajet lumineux.

La température est mesurée à l'aide d'un couple cuivre-constantan dont la soudure est placée à quelques millimètres seulement de la grille. Pour éviter que la soudure ne soit pas à la même température que le milieu ambiant, les deux fils qui constituent le couple ont été bobinés.

Malgré un gradient de température assez grand (différence de 5 °C environ entre la paroi et le centre à - 15 °C), on peut admettre que le couple indique correctement la température des gouttes sur la grille. En effet, l'observation du point de fusion de particules glacées ou d'autres substances congelées a permis de vérifier que, d'une façon générale, les températures sont connues à un demi-degré près (pour un état thermique stable du milieu).

Une ouverture latérale de 10 mm de diamètre laisse le passage à une tige en verre effilé manœuvrée à l'aide d'un micromanipulateur de FONTBRUNE. L'extrémité de l'aiguille de verre, qui peut avoir 5 à 10 μ de diamètre, permet de sonder les particules en cours d'observation et de s'assurer de leur état. Si l'on se trouve en présence de gouttelettes liquides, celles-ci sont

captées par la tige, au contraire les particules glacées restent attachées au fil. La vision oculaire étant quelquefois insuffisante (par suite de diffusion due à des condensations sur le système optique) pour distinguer avec certitude les gouttes liquides des gouttes congelées, le sondage, lui, ne laisse aucun doute sur la nature des particules.

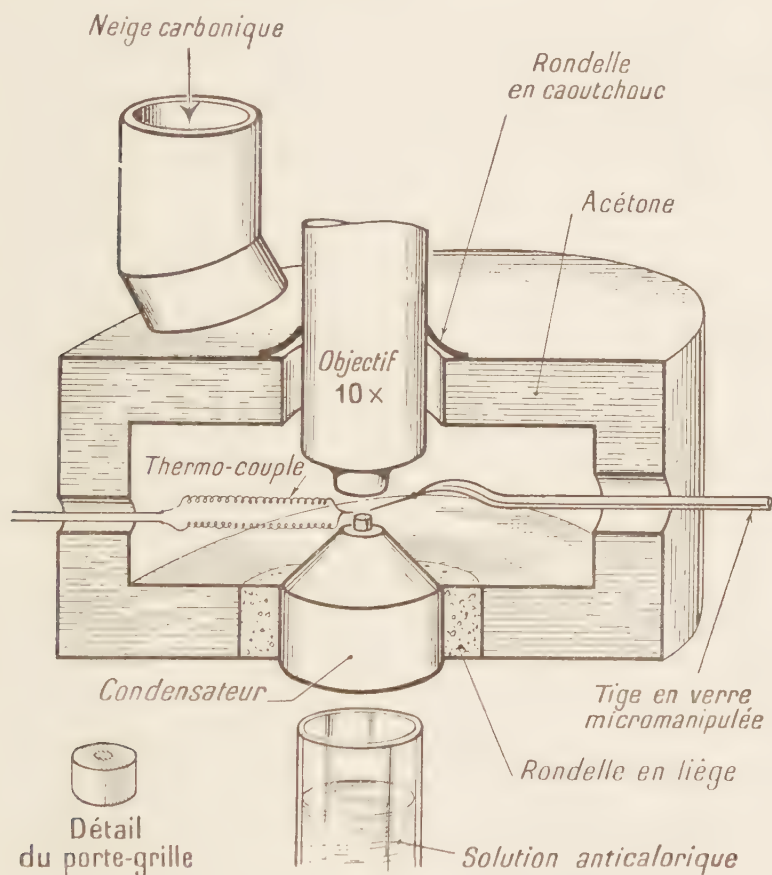


FIG. 1 bis. — Détail de la cuve centrale.

## CONDUITE DES EXPÉRIENCES

Si l'on fait arriver dans la cuve de l'air humide réfrigéré, la condensation de la vapeur d'eau produit un brouillard formé de très petites particules qui se vaporisent rapidement avant d'être captées par les fils. Seule une insufflation d'air humide relativement chaud (20 à 30 °C) permet d'obtenir des gouttelettes dont les diamètres varient entre 5 et 150  $\mu$  suivant la durée de l'insufflation, l'enceinte subit un réchauffement et il est pratiquement

impossible de contrôler la variation de température pendant la période transitoire; néanmoins la température se stabilise assez rapidement à sa valeur initiale. Les gouttelettes persistent sur les fils pendant plusieurs minutes, ce qui laisse le temps de les refroidir progressivement et d'observer la limite de leur surfusion.

La lenteur avec laquelle les gouttes s'évaporent prouve que la pression de vapeur d'eau de l'air qui les entoure est voisine de la pression de saturation. Connaissant la vitesse d'évaporation, on peut d'après la formule donnée par YAMAMOTO et MIURA (1919) calculer la pression partielle de la vapeur d'eau.

Le temps d'évaporation  $t$  d'une goutte d'eau de rayon  $a$  microns est donné par :

$$t = 1,74 \times 10^{-5} \frac{T}{D(p_s - p_\infty)} a^2 + 4,04 \times 10^{-4} \frac{\sqrt{T}}{\alpha(p_s - p_\infty)} a$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air,  $T$  la température absolue de la goutte,  $p_s$  et  $p_\infty$  respectivement la pression de saturation à la température de la goutte et la pression de vapeur dans l'air ambiant exprimées en millimètres de mercure,  $\alpha$  un coefficient déterminé expérimentalement et trouvé égal à 0,023. Le calcul donne par exemple pour une goutte de  $10 \mu$  qui met une minute à s'évaporer à  $-10^\circ\text{C}$ , une pression partielle inférieure d'environ  $1/10$  mm Hg à la pression de saturation.

Il est à noter que cette pression reste supérieure à la pression de saturation relative à la glace pour la même température.

L'expérience a effectivement montré la croissance de particules glacées alors que pendant le même temps des gouttelettes s'évaporaient. La croissance est particulièrement visible pour les colonnes prismatiques. Toutefois, il a été constaté qu'en l'absence de gouttelettes liquides, les particules glacées se sublimaient lentement.

On sait que la température d'une goutte qui s'évapore n'est pas celle du milieu ambiant. KIVELOVITCH et ROULLEAU (1951) ont montré que la durée de mise en équilibre thermique d'une gouttelette est très rapide (quelques centièmes de seconde pour une gouttelette de  $10 \mu$ ); de plus la formule qu'ils proposent pour déterminer la température de la goutte, appliquée au cas présent où l'évaporation est lente, prouve que l'on peut assimiler à une fraction de degré près la température de la goutte à celle du milieu ambiant.

Au cours des expériences, le comportement des gouttelettes d'eau a été observé d'abord sur des fils vierges, puis sur des fils pollués d'iodure d'argent.

### 1° Sur fils d'araignée vierges.

La température de congélation des gouttes d'eau pure dépend essentiellement du diamètre de la particule, de sa vitesse de refroidissement et de sa durée de vie.

L'influence de la grosseur de la goutte est assez difficile à mettre en évidence ici à cause d'un phénomène de propagation des congélations le long des fils : plusieurs particules de taille très différente peuvent ainsi se congeler simultanément par suite de la congélation d'une seule d'entre elles. Mlle TOYE (1956) a remarqué un phénomène analogue en étudiant la dessiccation de gouttelettes de solutions salines portées par des fils. Il est possible que les fils soient creux et que l'amorçage des congélations (ou des dessiccations) se fasse par l'intermédiaire de l'âme d'eau à l'intérieur des fils.

Dans ce qui suit, aucune différence n'a été constatée entre des insufflations faites par la bouche et celles produites par un générateur de vapeur d'eau.

L'insufflation d'air humide est réalisée lorsque l'enceinte est à une température de l'ordre de 0 °C après quoi on refroidit la cuve progressivement.

La vitesse de refroidissement est de l'ordre de 0,05 à 0,1 °C/s; le diamètre des gouttes est compris entre 20 et 50  $\mu$ .

Pour les quarante expériences effectuées, les points de congélation se situent entre — 20 et — 30 °C avec la répartition suivante ( $T$  = températures de congélation;  $N$  = nombre de congélations observées) :

|              |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|--------------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
| $T$ (°C) ... | — 20 | — 21 | — 22 | — 23 | — 24 | — 25 | — 26 | — 27 | — 28 | — 29 |
| $N$ .....    | 4    | 6    | 6    | 6    | 6    | 2    | 3    | 3    | 2    | 2    |

Ces températures sont plus hautes que celles normalement observées pour des gouttes de cette dimension; BIGG (1953) donne par exemple une température de — 35 °C environ pour des gouttes de 50  $\mu$  en suspension entre deux liquides hydrophobes. Par contre, BREWER et PALMER (1951), examinant des gouttes déposées sur une surface métallique, indiquent — 30 °C comme température de congélation de gouttes de 30  $\mu$ . Il semble bien que le mode de contact de la goutte avec une surface étrangère et sa protection du milieu qui l'entoure conditionnent les limites de la surfusion. Il est également vraisemblable d'admettre, comme l'a proposé Mme ROULLEAU (1957), qu'à ces températures, les congélations sont provoquées par des noyaux, d'origine inconnue, présents dans les gouttelettes. De plus, étant donnée la propagation des glaciations le long des fils, la congélation d'une seule goutte peut se transmettre rapidement à tout l'ensemble, de sorte que la température de congélation observée correspond à la température d'activité la plus élevée parmi les noyaux contenus dans les gouttelettes.

Notons également que pour les gouttes plus grosses (de 100 à 300  $\mu$ ) qui se trouvent sur le support porte-grille siliconé, la surfusion cesse à des températures plus élevées mais qui n'excèdent pas — 12 °C.

Si le refroidissement est arrêté et stabilisé à une température supérieure à — 20 °C, des congélations peuvent se produire au bout d'un temps plus ou moins long suivant la température. Toutefois, au-dessus de — 12 °C

environ, il n'a pas été observé de congélation malgré une longue attente. Il semble donc que pour une température supérieure à  $-12^{\circ}\text{C}$ , la surfusion puisse durer indéfiniment. A partir de  $-12^{\circ}\text{C}$ , la surfusion peut persister plusieurs minutes, mais elle est limitée dans le temps. Les résultats numériques donnés ci-dessus correspondent à un refroidissement continu dont la durée n'excède pas huit minutes pour un abaissement de température de  $30^{\circ}\text{C}$ .

Par contre, si on insuffle l'air humide dans la cuve préalablement refroidie (à  $-15^{\circ}\text{C}$  par exemple), il peut arriver que les gouttelettes d'eau captées par les fils se congèlent immédiatement.

Il est impossible de préciser avec exactitude la température de congélation, puisque comme il a été dit plus haut, la température est difficilement contrôlable en régime transitoire.

Quoi qu'il en soit, il semble bien que le refroidissement brutal d'une goutte puisse provoquer sa congélation prématurée bien avant  $-20^{\circ}\text{C}$ .

D'autres expériences ont mis en évidence ce phénomène. Une très grosse goutte déposée sur la soudure du couple est refroidie progressivement : dans ces conditions, la surfusion (conditionnée principalement par le contact de la goutte et du couple) peut se poursuivre jusqu'à des températures comprises entre  $-5$  et  $-18^{\circ}\text{C}$ . La congélation se traduit par un brusque réchauffement de la soudure, facilement décelable au millivoltmètre. Si, au contraire, la goutte est introduite rapidement dans la chambre froide, sa congélation peut se produire dès  $0^{\circ}\text{C}$  comme le prouve le net palier de congélation indiquée par le couple.

Les remarques précédentes sont en contradiction avec les conclusions de BIGG (1953) qui admet que la probabilité  $P$  de congélation d'une goutte de volume donné que l'on refroidit à une température  $T$  en dessous de  $0^{\circ}\text{C}$  en un temps  $t$  est donné par la relation :



Courbes de refroidissement d'une goutte d'eau déposée sur la soudure d'un couple.

$$\log (1 - P) = -K \cdot t$$

où  $K$  est une constante qui dépend de la température  $T$  et du volume de la goutte. Cette formule donnerait donc une probabilité de congélation décroissante quand le temps de refroidissement diminue.

Si l'on poursuit le refroidissement jusqu'à  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$  environ, on assiste alors à une pluie de particules glacées de  $5$  à  $10\text{ }\mu$  qui s'abattent sur les fils. Une grille correspondant à une longueur totale de fil de  $15\text{ mm}$  reçoit en moins d'une minute une centaine de particules. On ne peut affirmer que ces cristaux se soient formés spontanément à  $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Il est possible que ces particules proviennent de régions plus froides de la cuve dont certains points peuvent se trouver à  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$ , température généralement admise comme limite de la surfusion de l'eau.

### *Remarques relatives aux gouttes à appendice.*

Au cours de plusieurs observations, la congélation de certaines gouttes s'est accompagnée du jaillissement instantané d'un appendice issu d'un point de leur surface. La longueur de cette excroissance est, en général, du même ordre de grandeur que le diamètre de la goutte.

L'aspect d'une telle goutte est totalement différent de celui que l'on peut observer par suite de croissances dues à une sublimation de vapeur. Dans ce dernier cas, la forme des arborescences est nettement cristalline.

Le processus de formation de ces appendices peut être expliqué si l'on admet que la congélation de la goutte débute par sa surface, la solidification se propageant ensuite vers l'intérieur de la goutte. Par suite de l'augmentation de volume résultant de la solidification, le liquide intérieur exerce une pression croissante sur son manteau de glace. Celui-ci finit par céder en un point de moindre résistance pour laisser le passage à un jet liquide qui se congèle aussitôt.

Ce phénomène s'est souvent produit spontanément sans cause apparente; dans d'autres cas, on a pu le provoquer en touchant à l'aide du micromanipulateur une goutte surfondue avec un cristal de glace. On se trouve bien alors en présence d'une congélation amorcée à partir de la surface de la goutte; ceci semble confirmer le mécanisme de propagation de la congélation proposé ci-dessus.

## **2° Sur fils pollués d'iodure d'argent.**

Les pollutions d'iodure d'argent ont été réalisées, soit en aspirant à travers la grille des fumées d'un charbon en ignition imprégné de solution acétonique d'iodure à  $20\%$ , soit en saupoudrant des fils de cristaux d'iodure du commerce.

L'activité de l'iodure d'argent a été vérifiée par la méthode de C. LAFARGUE : des gouttes d'eau sont déposées sur du mercure recouvert d'une couche de silicone; le contact entre les fils pollués et les gouttes amorce bien la congélation de l'eau à partir de  $-4\text{ }^{\circ}\text{C}$ . De même, une goutte dans laquelle on a introduit avant le refroidissement, un cristal d'iodure, se congèle dès que la température atteint la valeur critique de  $-4\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

Dans le but de vérifier le comportement, dans la chambre froide, des gouttelettes d'eau sur fils pollués, des expériences ont été réalisées avec la même technique d'insufflation décrite à propos des fils vierges. Les observations ont conduit aux résultats assez inattendus que voici :

a) Si la grille polluée d'iodure est introduite dans l'enceinte préalablement refroidie à  $-4\text{ }^{\circ}\text{C}$ , l'insufflation de vapeur d'eau donne des gouttelettes qui se congèlent normalement dès que la température s'abaisse entre  $-4$  et  $-7\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

b) Par contre si les fils sont introduits dans la cuve à la température ambiante puis refroidie vers  $-5\text{ }^{\circ}\text{C}$ , l'insufflation réalisée alors dans les mêmes conditions que dans *a* donnera cette fois des condensations liquides qui ne congèleront pas. Les gouttes persistant plusieurs minutes sur des fils, on peut refroidir jusqu'à des températures variant de  $-12$  à  $-20\text{ }^{\circ}\text{C}$  sans constater de congélation. L'expérience est particulièrement probante avec des grains d'iodure; ceux-ci sont nettement visibles à l'intérieur des gouttes dans lesquelles ils sont, le plus souvent, en suspension.

Sans préjuger de la cause du phénomène, il est certain qu'une goutte peut, dans certains cas, rester en surfusion en présence d'iodure d'argent à des températures bien inférieures à la température critique normale de cet élément.

Nous nous sommes demandé si les fils placés dans la cuve à la température ambiante n'étaient pas le siège de condensations liquides au cours du refroidissement et, ceci, avant toute insufflation. Pour vérifier si des condensations préalables de vapeur d'eau pouvaient désactiver les noyaux, nous avons soumis des fils pollués d'iodure à un brouillard en portant les fils dans l'enceinte à une température supérieure à la température critique d'action de l'iodure (pratiquement vers  $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) et nous avons insufflé sur eux de l'air humide. Après avoir attendu que les gouttelettes captées par les fils soient évaporées, l'enceinte était refroidie jusqu'à  $-5\text{ }^{\circ}\text{C}$  où une nouvelle insufflation était faite, la température de la cuve était ensuite progressivement abaissée jusqu'à la congélation des gouttes.

Les températures de congélation observées dans ces conditions ont été les suivantes :

|                                                                       |                                  |
|-----------------------------------------------------------------------|----------------------------------|
| — $7,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $-10,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ (1) | — $15\text{ }^{\circ}\text{C}$   |
| — $8\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $-9,5\text{ }^{\circ}\text{C}$        | — $16,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ |
| — $10\text{ }^{\circ}\text{C}$                                        | — $17\text{ }^{\circ}\text{C}$   |
| — $10,5\text{ }^{\circ}\text{C}$                                      | — $17,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ |
| — $11\text{ }^{\circ}\text{C}$                                        | — $19,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ |
| — $12\text{ }^{\circ}\text{C}$                                        | — $20\text{ }^{\circ}\text{C}$   |
| — $13\text{ }^{\circ}\text{C}$                                        | — $20,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ |
| — $14\text{ }^{\circ}\text{C}$                                        |                                  |

(1) Les deux températures indiquent respectivement la première congélation observée et celle où toutes les gouttes sont congelées.

On constate que ces températures sont inférieures à la température normale d'action de l'iodure, mais qu'elles sont restées toutefois supérieures aux températures de congélation de gouttes sur fils vierges.

La condensation de gouttelettes suivie de leur évaporation a donc fait reculer, dans des proportions d'ailleurs variables suivant les expériences, la température d'action de l'iodure. Dans les expériences pour lesquelles la température de congélation a été voisine de  $-20^{\circ}\text{C}$ , on peut admettre que les fils pollués d'iodure se sont comportés sensiblement comme des fils vierges.

Nous avons voulu vérifier également si des fils pollués ayant déjà amorcé la congélation de gouttes gardaient leur propriété dans des actions ultérieures.

Pour cela, après avoir, par une première insufflation d'air humide, provoqué la congélation de gouttelettes sur les fils on attend que toute la glace soit sublimée, après quoi, une nouvelle insufflation était faite pour provoquer de nouveau des condensations d'eau sur les fils. Généralement, les congélations ne se sont plus reproduites à la même température il a fallu refroidir pour chaque expérience, jusqu'aux températures suivantes :

|                                     |                                     |
|-------------------------------------|-------------------------------------|
| — $7,5$ à — $15,5^{\circ}\text{C}$  | — $13,5^{\circ}\text{C}$            |
| — $8^{\circ}\text{C}$               | — $13,5^{\circ}\text{C}$            |
| — $12$ à — $18,5^{\circ}\text{C}$   | — $14,5$ à — $18^{\circ}\text{C}$   |
| — $12,5$ à — $14^{\circ}\text{C}$   | — $14,5$ à — $15,5^{\circ}\text{C}$ |
| — $12,5^{\circ}\text{C}$            | — $15^{\circ}\text{C}$              |
| — $12,5$ à — $13,5^{\circ}\text{C}$ | — $17,5$ à — $21^{\circ}\text{C}$   |
| — $13^{\circ}\text{C}$              | — $18,5$ à — $21^{\circ}\text{C}$   |
| — $13^{\circ}\text{C}$              |                                     |

La répartition des températures est du même ordre que celle qui a été établie pour des noyaux d'iodure ayant subi une condensation suivie d'évaporation. Les conclusions sont donc les mêmes; les congélations préalables suivies de sublimation ont le même effet désactivant que le traitement précédent.

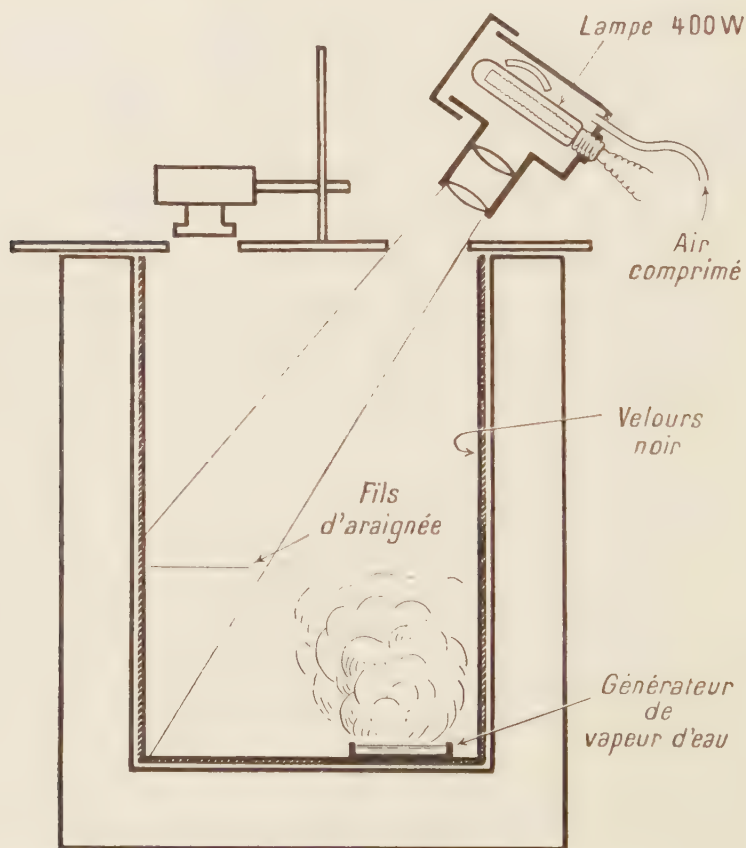
On ne peut toutefois pas accepter sans réserve de telles conclusions car la technique qui vient d'être décrite n'est pas sans défaut. D'une part, le fort gradient de température dû à l'exiguïté de la cuve ainsi que le réchauffement éventuel des gouttes par l'objectif du microscope sont des causes possibles d'erreur de température; d'autre part, la propagation des congélations sur des fils de  $1\text{ mm}$  de longueur ne permet pas d'étudier individuellement la surfusion des gouttes qui y sont fixées. Le mode de formation des gouttelettes par insufflation directe à la bouche rend incertaine la température à laquelle les gouttes prennent contact avec les fils, ce qui peut conditionner leur action glaçogène.

Aussi ce dispositif a-t-il été abandonné pour un autre mode opératoire dans lequel nous nous sommes efforcé de nous affranchir des inconvénients cités ci-dessus.

Les expériences qui vont être décrites ont été faites dans une chambre de grande capacité avec des fils d'araignée de grande longueur; l'observation était visuelle ou photographique et le brouillard de vapeur d'eau rendu plus homogène et permanent.

## EXPÉRIENCES RÉALISÉES DANS UNE CHAMBRE FROIDE DE GRANDE CAPACITÉ

La chambre froide est un conservateur de glace *Frigidaire* de capacité 90 l dont les parois sont tapissées de velours noir. Au fond de la cuve est placé un générateur de vapeur d'eau constitué par une boîte de PÉTRI remplie d'eau chauffée par une résistance de 20 W; un brouillard homogène est ainsi créé dans toute l'enceinte.



Les noyaux d'iodure d'argent sont captés par des fils d'araignée longs d'une dizaine de centimètres et tendus sur des supports en fils de laiton. La captation des noyaux peut être obtenue de deux manières : soit en déplaçant les fils dans l'atmosphère de la hotte où l'iodure est sublimé (ce déplacement est réalisé grâce à un tourniquet entraîné par un moteur de tourne-disques sur lequel on peut placer jusqu'à quatre supports dont les grilles sont ainsi identiquement polluées); soit en disposant les grilles devant l'ouverture supérieure de la hotte par laquelle une soufflerie produit une aspiration des fumées qui passent ainsi sur les fils.

L'introduction de fils fraîchement pollués dans le brouillard surfondu produit sur ceux-ci des glaciations lorsque la température est comprise entre  $-4$  et  $-7$  °C. Éclairée obliquement par un faisceau lumineux provenant d'un projecteur de 400 W, les cristaux qui se forment sur les fils sont nettement visibles à l'œil nu et peuvent être photographiés. L'appareil photographique est un *Alpa-Reflex* format  $24 \times 36$  mm, la distance fils-objectif est d'environ 35 cm, l'ouverture utilisée est f/11, le temps de pose d'une seconde. Pour que les clichés soient pris avec le meilleur contraste, il y a intérêt à arrêter le fonctionnement du générateur de brouillard quelques minutes avant de prendre la photo.

L'immobilisation des noyaux sur les fils permet de les soumettre commodément à divers traitements désactivants et d'étudier également la variation de leur qualité glaçogène dans le temps.

### 1<sup>o</sup> Étude du pouvoir glaçogène de noyaux soumis à des condensations préalables.

a) *Condensation suivie d'une évaporation (C + E).* — Les fils pollués sont introduits dans le brouillard à température supérieure au seuil d'activité de l'iodure (au-dessus de  $-4$  °C). Après avoir attendu qu'ils soient recouverts de gouttelettes d'eau liquide, les fils sont retirés de la chambre froide (généralement après dix minutes de séjour dans le brouillard) et laissés dans l'air ambiant jusqu'à complète évaporation des gouttelettes. Après quoi, les fils sont remis dans le brouillard entre  $-5$  et  $-10$  °C.

b) *Condensation sans évaporation (C).* — Même traitement que le précédent mais les fils sont maintenus dans le brouillard que l'on refroidit progressivement jusqu'à une température comprise entre  $-5$  et  $-10$  °C.

### 2<sup>o</sup> Étude du pouvoir glaçogène de noyaux ayant déjà subi une action glaçogène.

Les fils sont introduits dans le brouillard entre  $-4$  et  $-7$  °C de façon à produire des cristaux de glace sur les fils.

L'activité des noyaux est ensuite de nouveau étudiée dans les mêmes conditions que la première fois après l'un des traitements suivants :

a) *Fusion (F)*. -- Les fils chargés de glace sont retirés un court instant (quelques secondes) de la cuve de façon à faire fondre les cristaux, puis remis dans le brouillard surfondu.

b) *Fusion suivie d'une évaporation (F + E)*. -- Même processus que le précédent mais on attend la complète évaporation des gouttelettes provenant de la fusion avant de remettre les fils dans la chambre froide.

c) *Sublimation (S)*. -- Après avoir formé des cristaux sur les fils, on supprime le brouillard en arrêtant le générateur de vapeur d'eau. On attend la complète sublimation de la glace, après quoi le générateur est de nouveau mis en marche.

### 3° Étude de l'influence de la lumière ultraviolette sur le pouvoir glaçogène de l'iodure d'argent.

*Ultraviolet (UV)*. -- L'effet désactivant de la lumière ultraviolette sur les noyaux d'iodure a été vérifiée en exposant des fils pollués, soit à la lumière d'un arc à vapeur de mercure disposé à une distance de 50 cm des fils, soit à la lumière solaire.

### 4° Étude de la variation des qualités glaçogènes de l'iodure d'argent en fonction du temps.

*Vieillessement (V)*. -- Une série de quatre réseaux de fils d'araignée sont pollués en même temps de la même façon et successivement introduits dans un brouillard surfondu à une température constante (comprise entre — 5 et — 10 °C) à des intervalles de temps différents.

Pour évaluer le degré de désactivation des noyaux après l'un de ces traitements, il est nécessaire pour le cas 1° a (C + E), 1° b (C), 3° (UV) de comparer l'abondance des glaciations supportées par les fils avec celle de fils témoins pollués en même temps et dans les mêmes conditions mais n'ayant subi aucun traitement.

Dans les cas 2° a (F), 2° b (F + E), 2° c (S), la comparaison se fait entre l'aspect des fils lors des premières congélations avec celles qui apparaissent après le traitement.

En ce qui concerne le quatrième cas (vieillessement), le degré de désactivation spontanée dans le temps est apprécié en comparant les glaciations sur les fils pollués introduits dans le brouillard après un certain temps de stockage avec celles qui apparaissent sur des fils frais pollués au même moment.

L'étude des clichés correspondant à l'observation de quatre cent vingt-trois grilles appelle un certain nombre de remarques.

1° Les glaciations apparaissent parfois sous forme de cristaux isolés mais le plus souvent la glace recouvre les fils suivant des barres discontinues plus ou moins longues. Il semble bien que les congélations se propagent le long des fils à partir d'un ou plusieurs centres de congélations, mais le phé-

nomène étant extrêmement rapide, il n'a pas été possible de le fixer par la photographie. L'aspect en « pointillés » des glaciations rend incertain le comptage des particules glacées et partant, le calcul des taux de désactivation.

Une première classification qualitative des résultats expérimentaux a d'abord été faite (PICCA, 1956) en groupant les cas de désactivation totale ou pratiquement totale, les cas de désactivation partielle pour lesquels le nombre de centres glacés a diminué dans des proportions variables et les cas de désactivation nulle ou très peu sensible.

Pour dénombrer les centres de glaciation et en déduire les taux de désactivation, nous avons écarté systématiquement tous les clichés présentant des barres glacées dont la longueur, ne permettant pas une interprétation suffisamment sûre, risquait d'entraîner des erreurs grossières dans le calcul du nombre de centres glacés.

Toutefois lorsque la désactivation était voisine de 100 %, le dénombrement exact des centres n'étant plus nécessaire, les expériences ont pu être prises en compte. Dans le cas où les petites barrettes glacées avaient une longueur suffisamment petite (n'excédant pas quelques millimètres), celles-ci ont été assimilées chacune à un centre glacé, sauf si des centres distincts pouvaient être décelés à l'intérieur de la barrette.

Nous avons rapporté dans les tableaux correspondant à chaque cas de désactivation le nombre de barrettes, la longueur totale qu'elles occupent, le nombre de cristaux isolés ainsi que le nombre total de centres glacés correspondants.

2° La comparaison de fils traités avec des fils témoins non traités nécessite l'identité de pollution des fils que l'on compare. Nous avons voulu vérifier si des fils pollués en même temps dans la même atmosphère à l'aide du tourne-disques présentaient un même nombre de centres glacés quand on les introduisait simultanément dans un brouillard surfondu.

L'expérience montre qu'en général l'homogénéité de pollution est satisfaisante mais il peut arriver que le nombre de glaciations soit différent d'une grille à l'autre et même d'un fil à l'autre dans une même grille. Les photos 4 et 5 donnent un exemple d'hétérogénéité entre deux grilles polluées dans les mêmes conditions (1). Il est probable que la nature du fil et sa dimension conditionnent la captation des noyaux; on peut penser que les fils étant isolants se chargent d'électricité électrostatique par frottement avec l'air et qu'ils peuvent repousser les noyaux qui sont chargés de même signe. Pour pallier à cet inconvénient, il suffirait de rendre les fils conducteurs en les dorant par exemple par vaporisation d'or dans le vide. Il n'a malheureusement pas été possible de réaliser ce perfectionnement faute du matériel nécessaire au dorage sous vide.

---

(1) DESSENS (1947) a observé un phénomène identique dans la captation des noyaux de condensation atmosphériques (*La Météo*, p. 328).

Il est certain que la possibilité d'une non-identité de pollution entre des fils que l'on compare laisse subsister un doute quant à l'exactitude des résultats quantitatifs.

3° Nous avons pu mettre en évidence une diminution du pouvoir glaçogène des noyaux dans le temps, sujet dont l'analyse sera exposée plus loin. Dans certains cas, nous avons observé une décroissance rapide au cours des premiers instants qui suivent la pollution des fils. Le phénomène n'est pas général et la vitesse de décroissance est variable d'une expérience à l'autre. Afin d'éviter des erreurs provenant de cette cause, nous avons pris la précaution, quand la comparaison des fils traités avec des fils témoins était nécessaire, d'introduire les deux séries de fils simultanément dans le brouillard surfondu.

## RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

### 1° a) *Condensation suivie d'évaporation.*

La classification qualitative des trente-deux expériences conduit aux résultats suivants :

- 35 % de désactivation totale ou presque totale;
- 60 % de désactivation partielle;
- 5 % de désactivation nulle ou peu sensible.

Le tableau I dans lequel ont été sélectionnées seize expériences pouvant donner lieu à une appréciation quantitative de taux de désactivation conduit aux chiffres suivants (en pourcentage) :

100, 100, 100, 89, 88, 82, 80, 77, 68, 66, 63, 62, 46, 35, 20.

Pour une expérience, le nombre de centres glacés était plus important sur les fils ayant subi la condensation que sur les fils témoins (68 % de plus). Ce cas correspond peut-être à une pollution particulièrement hétérogène entre les deux grilles comparées.

### 1° b) *Condensation sans évaporation.*

La classification qualitative des vingt-quatre expériences conduit aux résultats suivants :

- 15 % de désactivation totale ou presque totale.
- 35 % de désactivation partielle.
- 50 % de désactivation nulle ou peu sensible.

Le tableau II dans lequel ont été sélectionnées onze expériences pouvant se prêter à un comptage des particules glacées, donne les taux de désactivation suivants (en pourcentage).

100, 98, 95, 88, 87, 84, 81, 80, 73.

TABLEAU I

## Condensation + évaporation.

## GLACIATIONS.

| Nombre de fils | Température $\theta$ (°C) | Longueur totale des barres (mm) | Nombre $N$ de barres | Nombre $n$ de points | $N + n$ | Nombre de noyaux par fil | Taux de désactivation (%) |
|----------------|---------------------------|---------------------------------|----------------------|----------------------|---------|--------------------------|---------------------------|
| 11             | — 8,4                     | 664                             | 19                   | 0                    | 19      | 1,7                      | —                         |
| 12             | — 8,6                     | 0                               | 0                    | 0                    | 0       | 0                        | 100                       |
| 11             | — 8,1                     | 49                              | 38                   | 139                  | 177     | 16,1                     | —                         |
| 11             | — 7                       | 0                               | 0                    | 0                    | 0       | 0                        | 100                       |
| 8              | — 8,8                     | 636                             | 28                   | 0                    | —       | —                        | —                         |
| 8              | — 8,8                     | 0                               | 0                    | 2                    | —       | —                        | 100                       |
| 9              | — 8,2                     | 14                              | 12                   | 61                   | 73      | 8,1                      | —                         |
| 9              | — 9                       | 0                               | 0                    | 17                   | 17      | 1,9                      | 77                        |
| 10             | — 6,9                     | 63                              | 12                   | 10                   | 22      | 2,2                      | —                         |
| 10             | — 5,9                     | 0                               | 0                    | 4                    | 4       | 0,4                      | 82                        |
| 9              | — 6,1                     | 40                              | 27                   | 97                   | 124     | 13,8                     | —                         |
| 8              | — 7,3                     | 0                               | 0                    | 13                   | 13      | 1,6                      | 88                        |
| 10             | — 7,3                     | 631                             | 14                   | 14                   | 28      | 2,8                      | —                         |
| 10             | — 7,6                     | 0                               | 0                    | 0                    | 0       | 0                        | 100                       |
| 8              | — 7,6                     | 0                               | 0                    | 118                  | 118     | 14,7                     | —                         |
| 7              | — 7,6                     | 9                               | 2                    | 80                   | 82      | 11,8                     | 20                        |
| 6              | — 7,8                     | 0                               | 0                    | 720                  | 720     | 120                      | —                         |
| 9              | — 7,8                     | 0                               | 0                    | 700                  | 700     | 78                       | 35                        |
| 8              | — 8                       | 7                               | 1                    | 81                   | 81      | 1,01                     | —                         |
| 8              | — 8                       | 19                              | 3                    | 0                    | 3       | 0,37                     | 63                        |
| 8              | — 8                       | 21                              | 7                    | 226                  | 233     | 29                       | —                         |
| 9              | — 7                       | 0                               | 0                    | 83                   | 83      | 9,2                      | 68                        |
| 8              | — 8,3                     | 36                              | 8                    | 206                  | 214     | 26,7                     | —                         |
| 8              | — 7                       | 0                               | 0                    | 30                   | 30      | 3,65                     | 89                        |
| 8              | — 7,5                     | 26                              | 9                    | 77                   | 86      | 10,7                     | —                         |
| 7              | — 8                       | 0                               | 0                    | 126                  | 126     | 18                       | 68                        |
| 8              | — 7,6                     | 355                             | 113                  | 115                  | 228     | 28,5                     | —                         |
| 6              | — 8                       | 0                               | 0                    | 34                   | 34      | 5,65                     | 80                        |
| 8              | — 8                       | 88                              | 34                   | 200                  | 234     | 29,3                     | —                         |
| 7              | — 7,3                     | 17                              | 10                   | 59                   | 69      | 9,9                      | 66                        |
| 7              | — 7,6                     | 118                             | 32                   | 61                   | 93      | 19,3                     | —                         |
| 7              | — 8                       | 71                              | 17                   | 35                   | 52      | 7,4                      | 62                        |

Pour chaque expérience, la première ligne correspond aux fils témoins, la deuxième, aux fils ayant subi une condensation suivie d'évaporation.

Dans deux expériences, le nombre de centres glacés sur les fils traités était supérieur à ceux des fils témoins (150 et 45 % de plus).

Il semble bien que les condensations préalables d'eau liquide sur les noyaux peuvent leur faire perdre leur propriété glaçogène. Le traitement : condensation suivie d'évaporation paraît plus efficace à ce point de vue que

la condensation sans évaporation, mais nous devons remarquer que dans les expériences relatives à ce dernier cas, il n'est pas possible d'être sûr qu'une gouttelette qui se condense autour d'un noyau n'ait pu s'évaporer malgré l'entretien permanent du brouillard.

Nous pouvons donc nous demander si les désactivations constatées après le traitement appelé condensation sans évaporation, ne sont pas dues, en fait, à des condensations suivies d'évaporation au sein même du brouillard. Notons également que les fils qui ont subi le traitement : condensation sans évaporation sont restés dans le brouillard pendant un temps bien plus grand que ceux qui ont subi la condensation suivie d'évaporation. En effet, dans ce dernier cas, les fils ne sont restés que cinq à dix minutes dans le brouillard vers 0 °C alors que, dans le cas de la condensation sans évaporation, les fils sont restés dans le brouillard pendant le temps nécessaire au refroidissement jusqu'aux températures d'action de l'iode, durée qui est de l'ordre de quarante minutes.

TABLEAU II  
Condensation sans évaporation.

GLACIATIONS.

| Nombre de fils | Température $\theta$ (°C) | Longueur totale des barres (mm) | Nombre N de barres | Nombre n de points | N - n | Nombre de noyaux par fil | Taux de désactivation (%) |
|----------------|---------------------------|---------------------------------|--------------------|--------------------|-------|--------------------------|---------------------------|
| 11             | — 8,7                     | 49                              | 26                 | 159                | 185   | 16,8                     | —                         |
| 10             | — 7,8                     | 3                               | 1                  | 8                  | 9     | 0,9                      | 95                        |
| 10             | — 8,2                     | 14                              | 12                 | 61                 | 73    | 7,3                      | —                         |
| 10             | — 7,8                     | 270                             | 91                 | 92                 | 183   | 18,3                     | — 150                     |
| 9              | — 7                       | 193                             | 37                 | 9                  | 46    | 5,1                      | —                         |
| 8,5            | — 6                       | 10                              | 1                  | 7                  | 8     | 0,94                     | 81                        |
| 9              | — 7,6                     | 40                              | 27                 | 97                 | 134   | 14,9                     | —                         |
| 10             | — 7                       | 0                               | 0                  | 30                 | 30    | 3                        | 80                        |
| 8              | — 7,6                     | 0                               | 0                  | 111                | 111   | 13,9                     | —                         |
| 6              | — 7,5                     | 0                               | 0                  | 0                  | 0     | 0                        | 100                       |
| 8              | — 8                       | 7                               | 1                  | 80                 | 81    | 10,1                     | —                         |
| 8              | — 8                       | 75                              | 11                 | 11                 | 22    | 2,75                     | 73                        |
| 8              | — 7                       | 21                              | 7                  | 226                | 233   | 29                       | —                         |
| 10             | — 7                       | 26                              | 7                  | 32                 | 39    | 3,9                      | 87                        |
| 8              | — 8                       | 36                              | 8                  | 206                | 214   | 26,8                     | —                         |
| 9              | — 8                       | 28                              | 3                  | 347                | 350   | 39                       | — 45                      |
| 7              | — 8                       | 0                               | 0                  | 770                | 770   | 110                      | —                         |
| 7              | — 7,5                     | 35                              | 13                 | 5                  | 18    | 2,50                     | 98                        |
| 7              | — 8,5                     | 35                              | 13                 | 396                | 409   | 58,5                     | —                         |
| 7              | — 7,6                     | 0                               | 0                  | 66                 | 66    | 9,4                      | 84                        |
| 8              | — 7,3                     | 0                               | 0                  | 400                | 400   | 50                       | —                         |
| 8              | — 7,6                     | 63                              | 15                 | 33                 | —     | 6                        | 88                        |

Pour chaque expérience, la première ligne correspond aux fils témoins, la deuxième, aux fils ayant subi une condensation sans évaporation.

**2° a) Fusion.**

La classification qualitative donne pour les trente-huit expériences :

0 % de désactivation totale.

60 % de désactivation partielle.

40 % de désactivation nulle ou peu sensible.

Le tableau III rapporte les résultats quantitatifs de sept expériences, nous avons noté le nombre de cristaux communs (1) existant entre les fils avant et après la fusion; pour la dernière expérience, les fils ont été soumis à sept fusions successives et le nombre de cristaux communs a été établi en comparant les glaciations initiales avec celles qui apparaissent après la n<sup>e</sup> fusion.

Les taux de désactivation en pourcentage ont été de : 90, 77, 74, 60, 57 et 18, après une seule fusion; et 66, 72, 74, 80, 84, 86, 94, pour les sept fusions successives des mêmes fils pollués.

TABLEAU III

**Fusion.**

| Température<br>(°C) | Nombre<br>de fusion | Nombre<br>de cristaux | Nombre<br>de cristaux<br>communs | Taux<br>de<br>désactivation<br>(%) |
|---------------------|---------------------|-----------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| — 7                 | 0                   | 87                    | —                                | —                                  |
| — 6                 | 1                   | 11                    | 9                                | 90                                 |
| — 6,3               | 0                   | 53                    | —                                | —                                  |
| — 6,8               | 1                   | 17                    | 14                               | 74                                 |
| — 8,8               | 0                   | 39                    | —                                | —                                  |
| — 10                | 1                   | 68                    | 32                               | 18                                 |
| — 8                 | 0                   | 22                    | —                                | —                                  |
| — 9,3               | 1                   | 8                     | 5                                | 77                                 |
| — 7,1               | 0                   | 52                    | —                                | —                                  |
| — 7,1               | 1                   | 37                    | 21                               | 60                                 |
| — 8,9               | 0                   | 61                    | —                                | —                                  |
| — 8,8               | 1                   | 54                    | 26                               | 57                                 |
| — 8,1               | 0                   | 50                    | —                                | —                                  |
| — 8,1               | 1                   | 26                    | 17                               | 66                                 |
| — 7,5               | 2                   | 16                    | 14                               | 72                                 |
| — 7,5               | 3                   | 25                    | 13                               | 74                                 |
| — 8,1               | 4                   | 19                    | 10                               | 80                                 |
| — 9                 | 5                   | 12                    | 8                                | 84                                 |
| — 7,5               | 6                   | 11                    | 7                                | 86                                 |
| — 7,5               | 7                   | 4                     | 3                                | 94                                 |

(1) La position des cristaux est repérée sur les fils par rapport au support ou aux points de croisements de certains fils. On admet qu'il n'y a pas de déplacement possible des noyaux sur les fils entre les opérations.

TABLEAU IV. — Fusion + évaporation.

| Température<br>(°C) | Nombre<br>de fusion<br>+ évaporation | Nombre<br>de cristaux | Nombre<br>de cristaux<br>communs | Taux<br>de<br>désactivation<br>(%) |
|---------------------|--------------------------------------|-----------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| — 8,1               | 0                                    | 65                    | —                                | —                                  |
| — 8,8               | 1                                    | 16                    | 13                               | 80                                 |
| — 8,1               | 0                                    | 46                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 2                     | 2                                | 96                                 |
| — 8,2               | 0                                    | 40                    | —                                | —                                  |
| — 9,4               | 1                                    | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 8,1               | 0                                    | 68                    | —                                | —                                  |
| — 9,1               | 1                                    | 20                    | 10                               | 85                                 |
| — 8,8               | 0                                    | 41                    | —                                | —                                  |
| — 9,5               | 1                                    | 3                     | 3                                | 93                                 |
| — 7,3               | 0                                    | 24                    | —                                | —                                  |
| — 7,6               | 1                                    | 1                     | 1                                | 96                                 |
| — 8,7               | 0                                    | 40                    | —                                | —                                  |
| — 9,3               | 1                                    | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 7,6               | 0                                    | 33                    | —                                | —                                  |
| — 6,4               | 1                                    | 1                     | 1                                | 97                                 |
| — 7,4               | 0                                    | 44                    | —                                | —                                  |
| — 7,4               | 1                                    | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 6,7               | 0                                    | 62                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                                    | 27                    | 20                               | 68                                 |
| — 7                 | 0                                    | 38                    | —                                | —                                  |
| — 6,9               | 1                                    | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 7,7               | 0                                    | 89                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                                    | 34                    | 26                               | 71                                 |
| — 7,6               | 0                                    | 77                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 28                    | 22                               | 71                                 |
| — 8                 | 0                                    | 98                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 49                    | 25                               | 75                                 |
| — 8                 | 0                                    | 142                   | —                                | —                                  |
| — 7,6               | 1                                    | 18                    | 16                               | 89                                 |
| — 7                 | 0                                    | 71                    | —                                | —                                  |
| — 7,3               | 1                                    | 13                    | 7                                | 90                                 |
| — 7,5               | 0                                    | 93                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 53                    | 52                               | 44                                 |
| — 8                 | 0                                    | 59                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 25                    | 18                               | 70                                 |
| — 7,8               | 0                                    | 61                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 30                    | 23                               | 62                                 |
| — 8                 | 0                                    | 47                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 17                    | 10                               | 79                                 |
| — 8                 | 0                                    | 56                    | —                                | —                                  |
| — 7,3               | 1                                    | 12                    | 9                                | 84                                 |
| — 7                 | 0                                    | 118                   | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 12                    | 10                               | 92                                 |
| — 7                 | 0                                    | 102                   | —                                | —                                  |
| — 8,3               | 1                                    | 10                    | 8                                | 92                                 |
| — 8                 | 0                                    | 53                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                                    | 13                    | 10                               | 81                                 |
| — 8                 | 0                                    | 60                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 30                    | 23                               | 62                                 |
| — 7                 | 0                                    | 25                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 2                     | 1                                | 96                                 |
| — 7,3               | 0                                    | 56                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 5                     | 1                                | 98                                 |
| — 7,3               | 0                                    | 87                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 43                    | 40                               | 54                                 |
| — 8                 | 0                                    | 69                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 16                    | 15                               | 78                                 |

2° b) *Fusion suivie d'une évaporation.*

La classification qualitative donne pour les quatre-vingt-treize expériences :

35 % de désactivation totale.

60 % de désactivation partielle.

5 % de désactivation nulle ou peu sensible.

Le tableau IV donne les résultats de comptage des particules glacées pour vingt-neuf expériences comportant une seule fusion + évaporation et sept expériences comportant plusieurs fusions + évaporations successives. Comme pour le cas précédent, nous avons distingué les cristaux communs entre les cristaux initiaux et ceux qui apparaissent après le traitement.

TABLEAU IV *bis*  
Fusions + évaporations successives.

| Température<br>(°C) | Nombre<br>de fusion<br>+ évaporation | Nombre<br>de cristaux | Nombre<br>de cristaux<br>communs | Taux<br>de<br>désactivation<br>(%) |
|---------------------|--------------------------------------|-----------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| — 6,7               | 0                                    | 62                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                                    | 27                    | 20                               | 68                                 |
| — 6,9               | 2                                    | 7                     | 6                                | 90                                 |
| — 7,9               | 3                                    | 9                     | 9                                | 85                                 |
| — 8                 | 4                                    | 3                     | 3                                | 95                                 |
| — 8                 | 0                                    | 98                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 49                    | 25                               | 75                                 |
| — 8                 | 2                                    | 1                     | 1                                | 99                                 |
| — 8                 | 0                                    | 59                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 25                    | 18                               | 70                                 |
| — 8                 | 2                                    | 25                    | 21                               | 64                                 |
| — 8                 | 3                                    | 17                    | 11                               | 81                                 |
| — 8                 | 4                                    | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 7,8               | —                                    | 61                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                                    | 30                    | 23                               | 62                                 |
| — 8                 | 2                                    | 46                    | 26                               | 58                                 |
| — 7,6               | 3                                    | 15                    | 10                               | 84                                 |
| — 8                 | 4                                    | 5                     | 5                                | 92                                 |
| — 8                 | 0                                    | 47                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 17                    | 10                               | 78                                 |
| — 8                 | 2                                    | 89                    | 30                               | 36                                 |
| — 7,3               | 3                                    | 37                    | 16                               | 64                                 |
| — 8                 | 0                                    | 53                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                                    | 13                    | 10                               | 81                                 |
| — 7,3               | 2                                    | 17                    | 14                               | 73                                 |
| — 7,3               | 3                                    | 1                     | 1                                | 98                                 |
| — 8                 | 0                                    | 70                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                                    | 30                    | 23                               | 67                                 |
| — 8                 | 2                                    | 10                    | 9                                | 87                                 |

Les taux de désactivation après une seule fusion + évaporation ont été (en pourcentage) :

100, 100, 100, 100, 98, 97, 96, 96, 96, 93, 92, 92, 90, 89, 85, 84,  
81, 80, 79, 78, 75, 71, 71, 70, 68, 62, 62, 54, 44.

### 2° c) *Sublimation.*

L'ensemble des quarante-cinq expériences classées qualitativement donne le groupement suivant :

25 % de désactivation totale.

50 % de désactivation partielle.

25 % de désactivation nulle ou peu sensible.

Le tableau V donne les résultats quantitatifs après comptage et repérage des particules glacées avant et après la sublimation.

Pour les vingt-quatre expériences, on note les taux de désactivation suivants :

100, 98, 98, 93, 88, 88, 88, 87, 86, 80, 74, 72, 71, 70, 69, 64,  
60, 57, 57, 57, 56, 54, 38, 35.

Les résultats des quatre expériences pour lesquels des comptages ont été faits après des sublimations successives sont rapportés dans le tableau V bis.

La photo n° 13 montre l'aspect d'un fil après chacune des sept sublimations successives (dernière expérience du tableau V bis) : dans ce cas le nombre de centres communs a été déterminé non pas à partir des glaciations initiales (trop nombreuses et trop serrées pour permettre un repérage suffisamment précis) mais par rapport aux fils correspondant aux glaciations observées après la première sublimation; les taux de désactivation ont été calculés à partir de ce même fil.

Les expériences montrent qu'après une première action glaçogène, les noyaux ne retrouvent pas tous leur propriété; de plus, le repérage des centres glacés permet d'affirmer que des noyaux n'ayant pas agi la première fois peuvent donner naissance à un cristal de glace après l'un des traitements précédents. Ces résultats sont en accord avec ceux publiés par MARUYAMA (1955) qui a constaté ces mêmes phénomènes sur des noyaux d'iodure d'argent, d'oxyde de magnésium et d'iodure de sodium déposés sur une lamelle de verre recouverte d'un film de collodion (1). Le phénomène semble donc général et non limité à la nature de l'iodure d'argent. Après une fusion de la glace suivie de l'évaporation de son eau de fusion ainsi qu'après la sublimation directe de la glace, l'effet désactivant semble être du même ordre de grandeur que celui dû à la condensation de vapeur d'eau suivie de son évaporation.

(1) Le fait que les phénomènes sont identiques pour des noyaux fixés sur film de collodion permet d'écarter la probabilité d'une mobilité des noyaux sur les fils.

TABLEAU V

## Sublimation.

| Température<br>(°C) | Nombre<br>de sublimation | Nombre<br>de cristaux | Nombre<br>de cristaux<br>communs | Taux<br>de<br>désactivation<br>(%) |
|---------------------|--------------------------|-----------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| — 8                 | 0                        | 61                    | 17                               | —                                  |
| — 9                 | 1                        | 59                    | —                                | 72                                 |
| — 8,7               | 0                        | 47                    | —                                | —                                  |
| — 6,7               | 1                        | 38                    | 20                               | 57                                 |
| — 7,5               | 0                        | 7                     | —                                | —                                  |
| — 8,5               | 1                        | 8                     | 3                                | 57                                 |
| — 10,7              | 0                        | 50                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 3                     | 1                                | 98                                 |
| — 7,3               | 0                        | 30                    | —                                | —                                  |
| — 6,3               | 1                        | 13                    | 6                                | 80                                 |
| — 9                 | 0                        | 86                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 2                     | 2                                | 98                                 |
| — 7                 | 0                        | 43                    | —                                | —                                  |
| — 6,5               | 1                        | 5                     | 3                                | 93                                 |
| — 8                 | 0                        | 42                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                        | 15                    | 5                                | 88                                 |
| — 9,3               | 0                        | 17                    | —                                | —                                  |
| — 9,4               | 1                        | 2                     | 2                                | 88                                 |
| — 7,5               | 0                        | 49                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                        | 14                    | 6                                | 88                                 |
| — 8                 | 0                        | 56                    | —                                | —                                  |
| — 8,3               | 1                        | 27                    | 14                               | 74                                 |
| — 7,2               | 0                        | 72                    | —                                | —                                  |
| — 6,9               | 1                        | 11                    | 9                                | 87                                 |
| — 7,5               | 0                        | 87                    | —                                | —                                  |
| — 6,9               | 1                        | 31                    | 27                               | 69                                 |
| — 7,1               | 0                        | 30                    | —                                | —                                  |
| — 8,7               | 3                        | 0                     | 0                                | 100                                |
| — 8                 | 0                        | 55                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 40                    | 36                               | 35                                 |
| — 7                 | 0                        | 54                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                        | 34                    | 23                               | 57                                 |
| — 8                 | 0                        | 37                    | —                                | —                                  |
| — 7,5               | 1                        | 42                    | 23                               | 38                                 |
| — 7,8               | 0                        | 30                    | —                                | —                                  |
| — 7,8               | 1                        | 20                    | 9                                | 70                                 |
| — 8                 | 0                        | 28                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 9                     | 8                                | 71                                 |
| — 7,6               | 0                        | 50                    | —                                | —                                  |
| — 7,3               | 1                        | 10                    | 7                                | 86                                 |
| — 8                 | 0                        | 67                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 29                    | 29                               | 56                                 |
| — 7,5               | 0                        | 177                   | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 198                   | 82                               | 54                                 |
| — 7,5               | 0                        | 111                   | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                        | 56                    | 41                               | 64                                 |
| — 7                 | 0                        | 77                    | —                                | —                                  |
| — 7                 | 1                        | 32                    | 31                               | 60                                 |

TABLEAU V *bis*

## Sublimations successives.

| Température<br>(°C) | Nombre<br>de<br>sublimation | Nombre<br>de cristaux | Nombre<br>de cristaux<br>communs | Taux<br>de<br>désactivation<br>(%) |
|---------------------|-----------------------------|-----------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| — 8                 | 0                           | 26                    | —                                | —                                  |
| — 9                 | 1                           | 16                    | 7                                | 73                                 |
| — 8                 | 2                           | 4                     | 3                                | 88                                 |
| — 7,8               | 0                           | 10                    | —                                | —                                  |
| — 7,8               | 1                           | 14                    | 6                                | 40                                 |
| — 7,8               | 2                           | 4                     | 4                                | 60                                 |
| — 8                 | 3                           | 1                     | 1                                | 90                                 |
| — 8                 | 0                           | 15                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 1                           | 7                     | 6                                | 60                                 |
| — 8                 | 2                           | 4                     | 4                                | 73                                 |
| — 8                 | 0                           | 122                   | —                                | —                                  |
| — 7,8               | 1                           | 35                    | —                                | —                                  |
| — 8                 | 2                           | 34                    | 16                               | 54                                 |
| — 8                 | 3                           | 55                    | 22                               | 24                                 |
| — 7,8               | 4                           | 17                    | 4                                | 89                                 |
| — 8                 | 5                           | 6                     | 2                                | 94                                 |
| — 7,6               | 6                           | 5                     | 2                                | 94                                 |

Dans la dernière expérience, les cristaux communs ont été dénombrés par rapport aux 2° glaciations.

Bien que dans certains cas, le traitement fusion sans évaporation ait pu donner des taux de désactivation importants pour l'ensemble des expériences, l'effet désactivant est moindre que pour la fusion suivie d'évaporation. Malheureusement, il n'est pas certain que, lors de la sortie des fils glacés hors de la chambre froide, il n'y ait eu véritablement que fusion des particules glacées sans évaporation. Bien que la mise en contact à la température ambiante soit de courte durée (cinq secondes au maximum), il est possible que les plus petites gouttelettes, provenant de la fusion de la glace, aient eu le temps de s'évaporer avant la réintroduction des fils dans le brouillard surfondu.

Ces réserves sont à rapprocher de celles qui ont été faites au sujet des expériences dites de condensation sans évaporation.

### 3° Ultraviolet.

Les expériences ont eu lieu en exposant les fils pollués à la lumière ultraviolette d'un arc à mercure (dix-neuf expériences) ou à la lumière solaire (vingt-quatre expériences).

Dans sept expériences seulement (dont trois par exposition au soleil), l'aspect des glaciations a permis de chiffrer le taux de désactivation. Les résultats sont portés dans le tableau VI.

Le nombre restreint d'expériences et l'incertitude d'une parfaite identité de pollution entre les fils exposés et les fils témoins ne permettent pas d'établir de relation valable entre les taux de désactivation et les temps d'exposition. Il semble toutefois que l'effet désactivant ne soit pas constant dans tous les cas; dans certaines expériences la totalité des noyaux paraissent désactivés au bout de 10 mn alors que dans d'autres, un traitement de plus longue durée est nécessaire.

TABLEAU VI

## Ultraviolet.

## GLACIATIONS.

| Nom-<br>bre<br>de fils | Temps<br>d'expo-<br>sition<br>(mn) | Tempé-<br>rature<br>$\theta$<br>(°C) | Longueur<br>totale<br>de barre<br>(mm) | Nombre N<br>de barre | Nombre n<br>de points | $N + n$   | Nombre<br>moyen de<br>cristaux | Taux<br>de désac-<br>tivation<br>(%) |
|------------------------|------------------------------------|--------------------------------------|----------------------------------------|----------------------|-----------------------|-----------|--------------------------------|--------------------------------------|
| 8,5<br>9               | 0<br>10                            | — 10,1<br>— 10,1                     | 173<br>0                               | 14<br>0              | 0<br>0                | 14<br>0   | 1,8<br>0                       | —<br>100                             |
| 12<br>12               | 0<br>34                            | — 7,6<br>— 7,3                       | 269<br>0                               | 51<br>0              | 109<br>3              | 160<br>3  | 13,3<br>0,25                   | —<br>98                              |
| 9<br>11                | 0<br>14                            | — 6<br>— 6                           | 156<br>0                               | 66<br>0              | 132<br>74             | 198<br>74 | 22<br>6,7                      | —<br>70                              |
| 9<br>9                 | 0<br>24                            | — 8<br>— 8                           | 35<br>22                               | 15<br>7              | 12<br>5               | 27<br>12  | 3<br>1,33                      | —<br>56                              |
| 10<br>8                | 0<br>75 (sol.)                     | — 7,4<br>— 7,1                       | 750<br>0                               | 11<br>0              | 6<br>0                | 17<br>0   | 1,7<br>0                       | —<br>100                             |
| 9<br>9                 | 0<br>40 (sol.)                     | — 8<br>— 7,4                         | 743<br>2                               | 11<br>1              | 0<br>4                | 11<br>5   | 1,22<br>0,55                   | —<br>55                              |
| 10<br>8                | 0<br>38 (sol.)                     | — 6,5<br>— 6                         | 598<br>0                               | 8<br>0               | 0<br>0                | 8<br>0    | 0,8<br>0                       | —<br>100                             |

Les expériences marquées (sol.) correspondent à une exposition à la lumière solaire.

Dans les conditions de nos expériences, la plupart des noyaux ont leur propriété glaçogène détruite après un temps d'exposition supérieur à 30 mn environ, ce qui est conforme à l'ordre de grandeur avancé par INN (1951) qui trouve qu'un temps de 10 à 20 mn est nécessaire à la désactivation complète des noyaux situés à 25 cm environ d'une source d'ultraviolet.

#### 4° Vieillessement.

Les expériences montrent que le nombre de noyaux actifs décroît avec le temps dans des proportions extrêmement variables d'un cas à l'autre.

TABLEAU VII

## Vieillissement.

## GLACIATIONS.

| Nom-<br>bre<br>de fils | Temps<br>de vieillis-<br>sment<br>(mn) | Tempé-<br>rature<br>0<br>(°C) | Longueur<br>totale<br>des barres<br>(mm) | Nombre N<br>de barres | Nombre n<br>de points | N - n | Nombre<br>de noyaux<br>par fil | Taux<br>de désac-<br>tivation<br>(%) |
|------------------------|----------------------------------------|-------------------------------|------------------------------------------|-----------------------|-----------------------|-------|--------------------------------|--------------------------------------|
| 6,5                    | 0                                      | — 10                          | 38                                       | 9                     | 169                   | 178   | 27,4                           | —                                    |
| 7                      | 30                                     | — 10                          | 84                                       | 15                    | 115                   | 130   | 18,6                           | + 35                                 |
| 7                      | 90                                     | — 10                          | 0                                        | 0                     | 81                    | 81    | 11,6                           | + 57                                 |
| 7                      | 105                                    | — 10                          | 76                                       | 15                    | 66                    | 81    | 11,6                           | + 57                                 |
| 8                      | 0                                      | — 7,5                         | 73                                       | 15                    | 270                   | 285   | 35,6                           | —                                    |
| 6                      | 10                                     | — 7,8                         | 60                                       | 13                    | 41                    | 54    | 9,2                            | + 74                                 |
| 8                      | 20                                     | — 7                           | 0                                        | 0                     | 15                    | 15    | 1,8                            | + 94                                 |
| 9                      | 30                                     | — 7                           | 0                                        | 0                     | 8                     | 8     | 0,9                            | + 97                                 |
| 7                      | 0                                      | — 7                           | 35                                       | 15                    | 190                   | 205   | 29,2                           | —                                    |
| 7                      | 7                                      | — 7                           | 4                                        | 1                     | 4                     | 5     | 0,7                            | + 97                                 |
| 6                      | 14                                     | — 7                           | 0                                        | 0                     | 2                     | 2     | 0,3                            | + 99                                 |
| 8                      | 21                                     | — 7                           | 0                                        | 0                     | 3                     | 3     | 0,3                            | + 99                                 |
| 7                      | 0                                      | — 8                           | 10                                       | 2                     | 295                   | 297   | 42,4                           | —                                    |
| 8                      | 10                                     | — 7                           | 16                                       | 4                     | 370                   | 374   | 46,7                           | — 9                                  |
| 7                      | 20                                     | — 7                           | 97                                       | 6                     | 256                   | 262   | 37,4                           | + 12                                 |
| 7                      | 30                                     | — 8                           | 20                                       | 9                     | 51                    | 60    | 8,5                            | + 80                                 |
| <hr/>                  |                                        |                               |                                          |                       |                       |       |                                |                                      |
|                        | (h mn)                                 |                               |                                          |                       |                       |       |                                |                                      |
| 8                      | 0                                      | — 9,5                         | 0                                        | 0                     | 607                   | 607   | 76                             | —                                    |
| 9                      | 2 22                                   | — 8,2                         | 14                                       | 12                    | 61                    | 73    | 8,1                            | + 89                                 |
| 10                     | 0                                      | — 8,4                         | 476                                      | 56                    | 10                    | 66    | 6,6                            | —                                    |
| 10                     | 2 52                                   | — 6,9                         | 63                                       | 12                    | 10                    | 22    | 2,2                            | + 66                                 |
| 7                      | 0                                      | — 7                           | 9                                        | 2                     | 80                    | 82    | 1,17                           | —                                    |
| 8                      | 2 4                                    | — 7,6                         | 0                                        | 0                     | 118                   | 118   | 1,47                           | — 20                                 |
| 9                      | 0                                      | — 8                           | 0                                        | 0                     | 1 080                 | 1 080 | 120                            | —                                    |
| 6                      | 1 33                                   | — 7,8                         | 0                                        | 0                     | 720                   | 720   | 120                            | 0                                    |
| 7                      | 0                                      | — 8                           | 0                                        | 0                     | 106                   | 106   | 15,1                           | —                                    |
| 8                      | 1 35                                   | — 8                           | 7                                        | 1                     | 81                    | 81    | 10,1                           | + 33                                 |
| 10                     | 0                                      | — 7,3                         | 0                                        | 0                     | 670                   | 670   | 67                             | —                                    |
| 8                      | 1 27                                   | — 8                           | 21                                       | 7                     | 226                   | 233   | 29                             | + 56                                 |
| 8                      | 0                                      | — 8                           | 20                                       | 9                     | 245                   | 254   | 31,7                           | —                                    |
| 8                      | 1 29                                   | — 8,3                         | 36                                       | 8                     | 206                   | 214   | 26,7                           | + 15                                 |
| 7                      | 0                                      | — 7,5                         | 0                                        | 0                     | 770                   | 770   | 11                             | —                                    |
| 8                      | 1 27                                   | — 7,5                         | 26                                       | 9                     | 77                    | 86    | 10,7                           | + 93                                 |
| 7                      | 0                                      | — 8                           | 35                                       | 13                    | 306                   | 319   | 45,9                           | —                                    |
| 8                      | 4 31                                   | — 7,6                         | 355                                      | 113                   | 115                   | 228   | 28,5                           | + 38                                 |
| 8                      | 0                                      | — 7,6                         | 0                                        | 0                     | 400                   | 50    | 400                            | —                                    |
| 8                      | 1 21                                   | — 8                           | 88                                       | 34                    | 200                   | 29,43 | 234,3                          | + 61                                 |
| 10                     | 0                                      | — 7                           | 50                                       | 13                    | 28                    | 4,1   | 41                             | —                                    |
| 9                      | 1 04                                   | — 8                           | 35                                       | 15                    | 12                    | 3     | 27                             | + 36                                 |

TABLEAU VII *bis*

## GLACIATIONS.

| Nom-<br>bre<br>de fils | Temps<br>de vieillissement | Tempé-<br>rature<br>θ | Longueur<br>totale<br>des barres | Nombre N<br>de barres | Nombre n<br>de points | N + n | Nombre<br>de noyaux<br>par fil | Taux<br>de désac-<br>tivation |
|------------------------|----------------------------|-----------------------|----------------------------------|-----------------------|-----------------------|-------|--------------------------------|-------------------------------|
|                        | (j)                        | (°C)                  | (mm)                             |                       |                       |       |                                | (%)                           |
| 10                     | 0                          | — 8                   | 90                               | 39                    | 91                    | 130   | 13                             | —                             |
| 8                      | 2,5                        | — 8,3                 | 8                                | 3                     | 27                    | 30    | 3,7                            | 71                            |
| 8                      | 6                          | — 8                   | 3                                | 1                     | 21                    | 22    | 2,7                            | 79                            |
| 9                      | 7                          | — 7,7                 | 0                                | 0                     | 44                    | 44    | 4,9                            | 62                            |
| 9                      | 0                          | — 7,3                 | 81                               | 18                    | 12                    | 30    | 3,3                            | —                             |
| 11                     | 3,5                        | — 7,2                 | 0                                | 0                     | 25                    | 25    | 2,3                            | + 30                          |
| 10                     | 7                          | — 8                   | 0                                | 0                     | 5                     | 5     | 0,5                            | + 85                          |
| 11                     | 0                          | — 7,1                 | 630                              | 11                    | 26                    | —     | —                              | —                             |
| 10                     | 8                          | — 6                   | 0                                | 0                     | 0                     | 0     | 0                              | 100                           |
| 10                     | 8                          | — 7,9                 | 0                                | 0                     | 4                     | 4     | 0,4                            | 100                           |
| 10                     | 0                          | — 8                   | 297                              | 39                    | 65                    | 104   | 10,4                           | —                             |
| 9                      | 6,5                        | — 7,5                 | 21                               | 1                     | 16                    | 17    | 1,9                            | 82                            |
| 9                      | 6,5                        | — 8,1                 | 103                              | 8                     | 12                    | 20    | 2,2                            | 79                            |
| 9                      | 6,5                        | — 7,5                 | 217                              | 15                    | 20                    | 35    | 3,8                            | 63                            |
| 10                     | 0                          | — 8                   | 49                               | 20                    | 67                    | 87    | 8,7                            | —                             |
| 10                     | 4                          | — 8                   | 0                                | 0                     | 27                    | 27    | 2,7                            | 69                            |
| 7                      | 4                          | — 7,5                 | 52                               | 4                     | 13                    | 17    | 2,4                            | 72                            |
| 8,5                    | 0                          | — 7,8                 | 23                               | 18                    | 44                    | 62    | 7,28                           | —                             |
| 9                      | 4                          | — 7,6                 | 1                                | 1                     | 5                     | 6     | 0,66                           | 92                            |
| 9                      | 0                          | — 8                   | 0                                | 0                     | 750                   | 750   | 83,5                           | —                             |
| 8                      | 3                          | — 7,8                 | 0                                | 0                     | 320                   | 320   | 40                             | 52                            |
| 9                      | 8                          | — 7,8                 | 0                                | 0                     | 292                   | 292   | 32,4                           | 61                            |
| 9                      | 21                         | — 7,5                 | 0                                | 0                     | 1                     | 1     | 0                              | 100                           |
| 7                      | 0                          | — 8                   | 216                              | 36                    | 136                   | 172   | 24,6                           | —                             |
| 8                      | 12                         | — 7,3                 | 0                                | 0                     | 3                     | 3     | 0                              | 100                           |

Le caractère aléatoire du vieillissement ne nous a pas permis d'établir une loi de décroissance en fonction du temps; la persistance du pouvoir glaçogène des noyaux dans le temps dépend de facteurs qu'il n'a pas été possible de déterminer.

D'une façon générale, des fils fraîchement pollués et introduits rapidement dans le brouillard surfondu donnent un nombre de cristaux de glace presque toujours supérieur à celui de fils pollués dans les mêmes conditions mais introduits dans le brouillard un certain temps après.

Nous avons groupé, dans le tableau VII, quinze expériences de vieillissement pour lesquelles un comptage des particules a pu être fait; les temps de vieillissement s'échelonnent depuis quelques minutes à plusieurs heures.

Le tableau VII *bis* donne les résultats de vieillissement portant sur plusieurs jours.

Comme on le voit, les taux de désactivation sont très variables et ne dépendent pas du temps d'une façon bien définie.

Il semble toutefois que la désactivation de la plupart des noyaux soit complète au bout d'un temps variant de dix à vingt jours. WEICKMANN (1955) étudiant l'action glaçogène de noyaux d'iodure d'argent déposés sur lame de verre a constaté une désactivation de rapport 1 000 en une nuit, c'est-à-dire que si 1 000 cristaux se sont formés sur de la fumée fraîche, après une journée, un seul cristal se formera au même emplacement et à la même température. On doit remarquer que dans ses expériences, les particules d'iodure ont déjà fonctionné une fois comme noyaux glaçogènes; la perte de leur activité serait due plutôt à une sublimation ou une fusion suivie d'évaporation conformément aux résultats exposés ci-dessus.

### CONCLUSIONS

Malgré le caractère souvent inconstant des désactivations, il apparaît qu'une action glaçogène préalable ou une condensation de vapeur d'eau sur un noyau d'iodure d'argent soit susceptible de lui faire perdre son pouvoir glaçogène. S'il arrive qu'un premier traitement laisse intact le noyau, plusieurs traitements successifs arrivent généralement à lui faire perdre son activité.

Le caractère aléatoire du vieillissement semble montrer que la permanence de la propriété glaçogène doit dépendre de facteurs encore inconnus qui peuvent être liés à la nature du noyau. De ces mêmes facteurs peut dépendre la résistance du noyau aux divers traitements désactivants. Il ne semble pas que la température de formation des noyaux influe beaucoup sur leur faculté de désactivation; en effet, aucune différence sensible n'a été observée entre des noyaux produits par des charbons brûlant en atmosphère confinée et ceux provenant de charbons dont l'ignition était activée par un jet d'air. Or, la ventilation activant la combustion du charbon, la dilution des fumées au voisinage de la pastille est augmentée ainsi que la vitesse de refroidissement des particules. Le dénombrement des noyaux actifs (SOULAGE, 1955 *b*) a montré que le rendement en noyaux augmentait avec la ventilation, la dimension des particules diminuant quand la puissance de ventilation croît. On pourrait s'attendre à ce que les plus petites particules aient une plus grande chance d'être désactivées; l'expérience n'a pas confirmé cette prévision. Mais, comme nous le verrons plus loin, des cristaux bien plus gros (quelques dizaines de microns) ont également pu être désactivés. Il est possible que pour des particules de fumée beaucoup plus petites, leur dimension n'influe sensiblement pas sur leur facilité de désactivation.

## CHAPITRE II

# ÉTUDE DE L'ACTIVITÉ DE FUMÉES LIBRES D'IODURE D'ARGENT

La fixation des noyaux sur les fils fins a permis de les soumettre commodément à divers traitements, mais il nous a paru de grand intérêt d'étudier également le comportement de fumées d'iodure libres dans des conditions voisines de celles rencontrées dans l'atmosphère.

La liberté de mouvement des particules et de la glace qu'elles peuvent induire entraîne des phénomènes de diffusion et de sédimentation qui limitent les possibilités de traitements auxquels on peut soumettre les fumées. On comprend en particulier que des cristaux de glace induits par des noyaux précipitent rapidement et échappent ainsi à toute étude ultérieure. Aussi nous nous sommes limités au problème de l'activité des fumées libres d'iodure d'argent après un séjour dans un brouillard de vapeur d'eau à une température supérieure au seuil d'action des noyaux.

## MODE OPÉRATOIRE

La fumée d'iodure d'argent est produite par combustion de 1 g de charbon BIDAULT imprégné à 5 % d'iodure d'argent ou par sublimation directe par chauffage de poudre d'iodure d'argent commerciale. Le générateur est placé dans une hotte de chimiste de 900 l environ de capacité et hermétiquement close. On prélève à l'aide d'une seringue un volume  $V$  connu d'air pollué que l'on injecte dans une chambre froide de 90 l dans laquelle un brouillard est maintenu au voisinage de 0 °C par un générateur de vapeur d'eau. Un volume identique d'air pollué est injecté dans une cuve témoin de même capacité que la précédente et contenant uniquement de l'air ambiant. Après une attente de quelques minutes, (cinq en général), on prélève un volume  $V'$  dans la cuve contenant le brouillard que l'on a pollué et on injecte ce prélèvement dans une troisième cuve où est maintenu un brouillard surfondu à basse température (— 14 °C dans la plupart des cas). Cette dernière cuve est celle qui a servi à l'étude des noyaux sur fils d'araignée et possède les aménagements déjà décrits permettant l'observation visuelle des cristaux de glace ou leur photographie.

Dans ce dernier cas, une lampe flash électronique de 60 J (MAZDA TE 30) est disposée à la place de la lampe du projecteur, ce qui permet la prise de clichés à grande vitesse (de l'ordre du  $1/1\,000$  s) mais nécessite une attente d'au moins dix secondes entre chaque photo. L'ouverture de l'appareil photographique est fixé à  $f/2,9$ .

Au bout d'un certain temps (qui dépend du nombre de cristaux et de la température), il n'y a plus de cristaux visibles dans la cuve et on injecte alors le même volume  $V'$  d'air pollué prélevé dans la cuve témoin. La comparaison des clichés pris dans les deux cas permet, par un comptage des particules glacées, d'apprécier et de chiffrer quantitativement le degré de désactivation des fumées qui ont séjourné dans le brouillard vers  $0\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Le dénombrement des cristaux de glace est fait sur les photographies tirées sur papier avec un grandissement constant (une ou deux fois la grandeur réelle). Comme la répartition des particules n'est pas toujours homogène sur le cliché, le comptage est fait à l'aide d'un cache découvrant une surface donnée de la photo et avec lequel on balaye systématiquement toute l'aire de la photo. On calcule ainsi le nombre moyen de cristaux par centimètre carré de surface. Étant donné la grande ouverture de l'appareil de prise de vue et la courte distance de mise au point, la profondeur de champ est assez faible et les cristaux n'apparaissent pas tous nets sur le cliché. Il a donc fallu se fixer arbitrairement une définition de netteté pour le comptage des particules et qui a été la suivante : quelle que soit la netteté et ses dimensions, toute tache, image décelable d'une particule glacée est comptée pour une unité.

Avant d'aborder l'étude des résultats expérimentaux relatifs à la désactivation des fumées traitées, il est nécessaire de considérer les deux questions suivantes qui conditionnent les données du problème, à savoir :

1° L'évolution du nombre de cristaux apparaissant dans le brouillard après l'injection d'air pollué : la connaissance de cette évolution est nécessaire à la justification du mode de comptage des particules glacées à partir duquel le taux de désactivation est calculé.

2° La décroissance du nombre des noyaux actifs dans une enceinte fermée : en effet, le prélèvement de l'air pollué dans la cuve témoin est injecté dans le brouillard surfondu un certain temps (de quinze à quarante minutes) après l'injection de la fumée traitée. L'impossibilité matérielle dans laquelle nous nous sommes trouvés de comparer simultanément les fumées traitées et les fumées témoins, nous oblige donc à connaître la vitesse de décroissance du nombre des noyaux actifs en fonction du temps.

## ÉVOLUTION DU NOMBRE DE CRISTAUX DE GLACE INDUITS PAR INJECTION D'AIR POLLUÉ DANS UN BROUILLARD SURFONDU

D'une façon générale, les cristaux de glace n'apparaissent pas instantanément après l'injection de la fumée d'iodure (qu'elle ait été ou non traitée). Les premières glaciations sont observées après un laps de temps d'autant plus court que la température est plus basse. Le nombre de cristaux visibles croît ensuite avec le temps, passe par un maximum et décroît ensuite lentement. Plus la température est basse, plus la valeur de ce maximum est élevé et plus le temps mis pour l'atteindre est court. C'est pourquoi la température de  $-14^{\circ}\text{C}$  a été généralement choisie comme température du brouillard surfondu, le nombre maximum de cristaux étant atteint après un temps d'environ trente secondes et la disparition complète des cristaux étant effective au bout de vingt à trente minutes.

Il est facile d'expliquer qualitativement la variation du nombre de cristaux en fonction du temps si l'on admet, d'une part, que la vitesse de nucléation des particules d'iodure est fonction principalement de la température (la vitesse croît beaucoup quand la température décroît) et que d'autre part, l'iodure se dépose sur les parois de la cuve. Pour de basses températures, la vitesse d'action étant grande, la plupart des noyaux peuvent agir avant le dépôt de toutes les particules; aux plus hautes températures, la vitesse de nucléation étant faible, le dépôt des particules sur les parois (et leur désactivation éventuelle par des condensations au sein du brouillard surfondu) fait décroître au cours du temps le nombre de particules ayant la possibilité d'agir, de sorte qu'une faible proportion des particules réussissent dans ce cas à donner des cristaux de glace.

On peut poser que le nombre de cristaux apparaissant pendant le temps  $dt$  est proportionnel au nombre  $n$  de particules susceptibles d'agir à l'instant  $t$ :

$dn_1 = \alpha \cdot n \cdot dt$  où  $\alpha$  est un coefficient dépendant de la vitesse d'action des particules. Pendant le même temps,  $dn_2$  particules disparaissent par suite de dépôt sur les parois et autres causes (en particulier, désactivation éventuelle par condensation avant qu'elles aient eu le temps d'agir...) (1).

$dn_2 = \beta \cdot n \cdot dt$  où  $\beta$  est le coefficient de sédimentation et de diffusion.

Pendant le temps  $dt$ , la variation du nombre de particules est donc :

$$dn = -(\alpha + \beta) n dt.$$

A l'instant  $t$  il y a donc  $n$  noyaux susceptibles d'agir avec :

$$n = n_0 e^{-(\alpha + \beta)t} \quad [1]$$

où  $n_0$  est le nombre total de particules injectées à l'instant 0.

(1) On néglige la décroissance par coagulation qui est peu sensible si le nombre de particules n'est pas trop élevé.

Soit  $n'$  le nombre de cristaux de glace visibles à l'instant  $t$ , pendant l'instant  $dt$  il en apparaît  $dn_1 = \alpha \cdot n \cdot dt$  et il en précipite  $dn_3 = \gamma \cdot n' \cdot dt$  où  $\gamma$  représente le coefficient de sédimentation des cristaux de glace (1).

Le nombre de cristaux augmente donc pendant  $dt$  de

$$dn' = dn_1 - dn_3 = (\alpha n - \gamma n') dt$$

$$\frac{dn'}{dt} + \gamma n' = \alpha n \quad [2]$$

où  $n$  est donné par l'équation [1].

La solution de cette équation différentielle, en tenant compte des conditions aux limites ( $t = 0$ ,  $n' = 0$ ), est :

$$n' = \frac{\alpha n_0 e^{-\gamma t}}{\alpha + \beta - \gamma} [1 - e^{-(\alpha + \beta - \gamma)t}] \quad [3]$$

Le maximum de  $n'$  est donné par l'équation :

$$\frac{dn'}{dt} = \frac{\alpha \gamma n_0}{\alpha + \beta - \gamma} e^{-\gamma t} \left[ \frac{\alpha + \beta}{\gamma} e^{-(\alpha + \beta - \gamma)t} - 1 \right] = 0 \quad [4]$$

ce qui est satisfait pour un temps

$$t = \frac{1}{\alpha + \beta - \gamma} \text{Log} \frac{\alpha + \beta}{\gamma}.$$

Quand la température décroît,  $\alpha$  croît rapidement,  $\beta$  et  $\gamma$  étant indépendants de la température, on voit que le temps mis pour atteindre le maximum décroît (la croissance du logarithme étant plus faible que celle de  $\alpha + \beta - \gamma$ ) ce qui est conforme à l'expérience.

La valeur de  $n'$  correspondant au maximum est égale à

$$n'_{max} = \frac{\alpha n_0}{\alpha + \beta} \left( \frac{\alpha + \beta}{\gamma} \right)^{-\frac{\gamma}{\alpha + \beta - \alpha}}.$$

En remarquant que  $\alpha$  est généralement petit devant  $\beta$  (sauf pour les très basses températures)  $n'_{max}$  croît quand la température décroît, résultat vérifié également par l'expérience.

Pour préciser l'allure de la courbe représentative de  $n'$  en fonction du temps, on peut noter que la pente au temps zéro est égale à  $\alpha n_0$ .

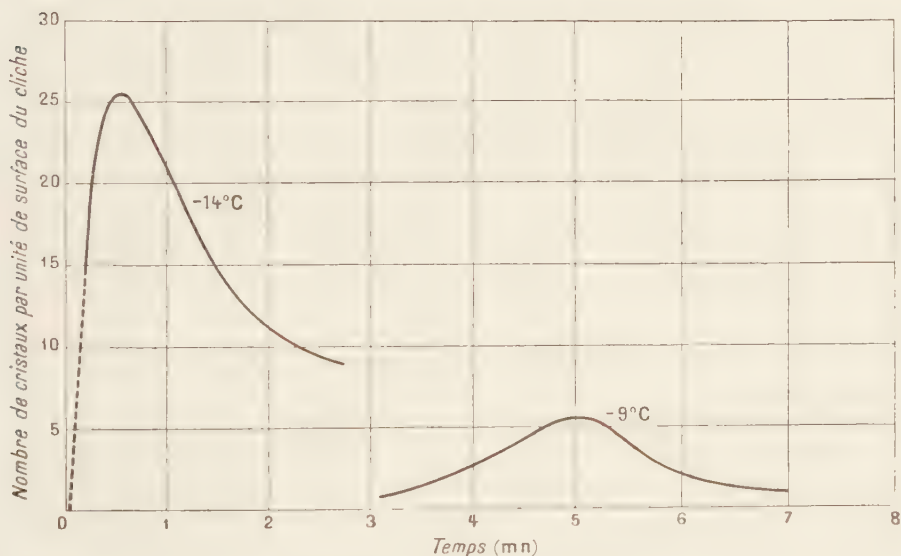
(1)  $\gamma = \frac{v}{h}$  où  $v$  est la vitesse de sédimentation des cristaux et  $h$ , la hauteur de la cuve. Si l'on admet que la densité de la glace est de 1 g/cm<sup>3</sup>, nous pouvons écrire :

$$\frac{\text{vitesse}}{\text{force}} = \frac{D}{k T} = \frac{v}{m g} \quad \text{d'où} \quad v = \frac{4}{3} \pi r^3 \cdot g D / k T$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion,  $k$  la constante de BOLZMANN,  $T$  la température absolue,  $r$  et  $m$  le rayon et la masse du cristal.

On a tracé quelques courbes  $n' = f(t)$  expérimentalement pour des températures différentes. Chaque courbe est obtenue en portant en ordonnée le nombre de cristaux comptés par centimètre carré de cliché agrandi une ou deux fois. Les clichés sont pris toutes les quinze ou vingt secondes après le début de l'injection. L'allure générale des courbes est bien en accord avec la théorie exposée ci-dessus, mais il ne paraît pas possible de comparer quantitativement les courbes entre elles, car, à conditions apparemment identiques (même formation de l'iodure, même température de brouillard...), les courbes ne sont pas toujours superposables. Il est possible que d'autres facteurs, par exemple la dimension des noyaux, conditionnent la vitesse de nucléation.

Nous pouvons toutefois avancer les ordres de grandeur suivants : le maximum de concentration de cristaux de glace est obtenu environ trente secondes après l'introduction de la fumée dans un brouillard à  $-14^{\circ}\text{C}$  alors qu'il faut attendre 5 mn environ pour une température de  $-9^{\circ}\text{C}$ .



Évolution en fonction du temps  
du nombre de cristaux de glace visibles dans un nuage inséminé par I Ag.

SOULAGE (1955 *b*) a signalé la grosse importance de ce phénomène dans les expériences de modification des nuages et particulièrement pour les essais de dissipation de stratus surfondus. Une température trop basse du nuage conduirait à une forte précipitation de cristaux de glace autour du générateur, alors que pour une température plus élevée, les noyaux auraient le temps de diffuser avant d'agir et produiraient ainsi des cristaux dispersés en faible concentration dans un plus grand volume de nuage.

VONNEGUT (1949) trouve expérimentalement <sup>(1)</sup> pour la vitesse de disparition des particules d'iodure  $\beta = 5,7 \times 10^{-3}$  s et constate que cette vitesse est bien plus grande que celle calculée par la formule de LANGMUIR :

$$\frac{d \text{Log } n}{dt} = 0,64 \frac{A}{V} D^{2/3}$$

où  $A$  et  $V$  représentent l'aire totale de la cuve et  $V$  son volume, et  $D$  le coefficient de diffusion sur les parois avec

$$D = \frac{2,04 \times 10^{-16}}{a^2} + \frac{1,18 \times 10^{-11}}{a}$$

$a$  représente le rayon des particules.

Pour  $a = 400$  Å, le coefficient de diffusion  $D = 6 \times 10^{-5}$  et la vitesse  $\beta = 1,3 \times 10^{-4}$ . Cette valeur numérique est valable pour notre cuve (où  $A = 12\,900$  cm<sup>2</sup> et  $V = 94\,660$  cm<sup>3</sup>) et pour une même dimension de noyaux.

Des expériences qui seront rapportées plus loin nous ont d'ailleurs permis de retrouver l'ordre de grandeur de ce chiffre.

Ce calcul ne tient pas compte de la diffusion thermique causée par le générateur de vapeur d'eau placé dans l'enceinte et qui doit augmenter la vitesse de précipitation sur les parois.

En utilisant le coefficient de diffusion, il est possible d'estimer la vitesse à laquelle la concentration de la fumée décroît par suite de la précipitation sur les gouttelettes d'eau du brouillard. On montre que la vitesse de variation de concentration due à cette cause est donnée par la relation :

$$\frac{d \text{Log } c}{dt} = 4 \pi D r Q \quad [5]$$

où  $r$  est le rayon des gouttelettes et  $Q$  le nombre de gouttelettes par centimètre cube.

Si l'on prend par exemple des gouttelettes de  $5 \mu$  de rayon <sup>(2)</sup> et un poids de 1 g d'eau par mètre cube sous forme liquide <sup>(3)</sup>, la vitesse de variation de concentration due à cette cause est de  $3,6 \times 10^{-4}$ , ce qui donne finalement pour  $\beta$  la valeur  $(1,3 + 3,6) \times 10^{-4}$  soit environ  $5 \times 10^{-4}$ , valeur encore très inférieure à celle trouvée expérimentalement par VONNEGUT.

Nous verrons plus loin que la perte d'activité par condensation de vapeur d'eau sur les noyaux peut expliquer la différence d'ordre de grandeur entre la valeur expérimentale et la valeur calculée du coefficient.

(1) VONNEGUT recueille sur une lamelle de verre les cristaux de glace induits par les noyaux d'iodure et qui tombent au fond de la cuve. Le comptage des cristaux de glace est effectué toutes les deux minutes et permet de connaître le nombre total de cristaux formés.

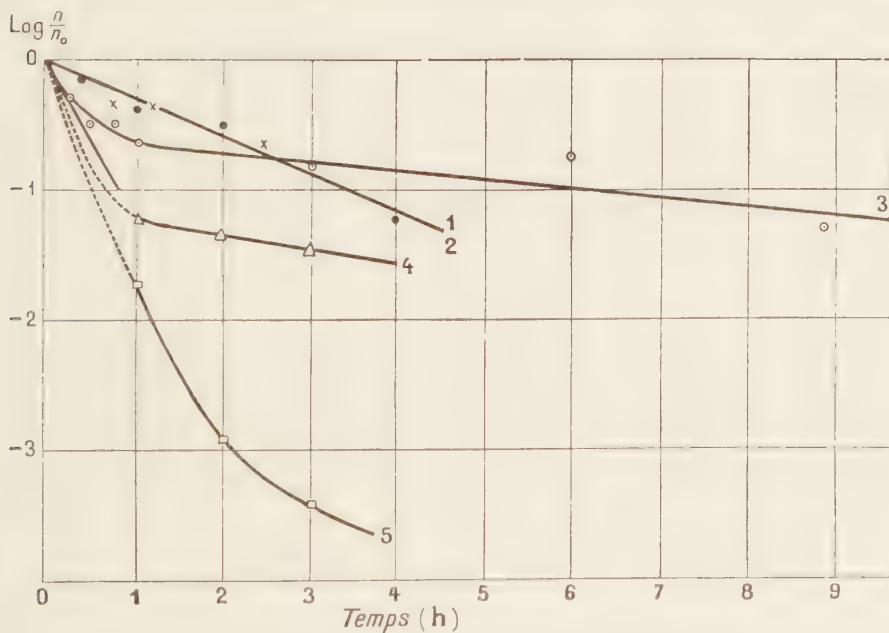
(2) Rayon maximum des gouttes pour un nuage artificiel d'après SERPOLAY (1956).

(3) Ce qui correspond à environ 1 900 gouttes par centimètre cube, nombre maximum admis par WEBB (1956) pour les nuages artificiels.

## DÉCROISSANCE, EN FONCTION DU TEMPS DU NOMBRE DE NOYAUX CONTENUS DANS UNE ENCEINTE FERMÉE

La fumée d'iodure est enfermée dans une cuve hermétiquement close de 90 l de capacité. Des volumes connus de fumée [de 5 à 1 000 cm<sup>3</sup> suivant la concentration (1)] sont prélevés à divers intervalles de temps et injectés dans un brouillard surfondu maintenu à température constante (généralement — 14 °C). Après chaque injection, des clichés du brouillard, en partie glacé, sont faits à des instants identiques après le début de l'injection (par exemple à la vingtième, trentième et soixantième seconde). L'étude faite au paragraphe précédent montre que, toutes choses égales par ailleurs, la loi de variation du nombre de cristaux de glace en fonction du temps doit être la même (à un facteur près) après chaque injection.

Le rapport  $n/n_0$  du nombre  $n$  de noyaux actifs restant après un temps  $t$  de stockage, au nombre  $n_0$  de noyaux existant à l'instant zéro doit donc être



Courbes de décroissance, en fonction du temps,  
du nombre de noyaux contenus dans une enceinte fermée.

(1) La diminution de concentration due aux prélèvements successifs ne dépasse pas quelques pour cent et pourra être négligée.

égal au rapport du nombre de cristaux de glace dénombrés sur des clichés correspondants (c'est-à-dire pris un même laps de temps après l'injection) pris après l'injection au temps  $t$  et celle qui a été faite au temps zéro.

L'expérience ne vérifie qu'assez grossièrement la constance de ce rapport suivant le moment où le cliché a été pris. Nous avons tracé quelques courbes donnant les variations du  $\log \frac{n}{n_0}$  en fonction du temps, en prenant, pour chaque prélèvement, le rapport moyen  $\frac{n}{n_0}$  calculé à partir de chaque série de clichés.

Les expériences 1 et 2 donnent une même courbe de décroissance linéaire du  $\log \frac{n_0}{n}$  avec une vitesse de décroissance égale à  $2 \times 10^{-4}$ .

La courbe 3 montre une décroissance plus rapide au cours de la première heure, puis une décroissance linéaire de pente  $1,2 \times 10^{-4}$ .

Dans les expériences 1, 2 et 3, l'iodure d'argent a été sublimé dans la hotte de 900 l par combustion de 1 g de charbon imprégné à 2 % d'iodure d'argent. Un litre d'air a ensuite été prélevé dans la hotte pour être enfermé dans la cuve de 90 l.

Dans les expériences 4 et 5, l'iodure d'argent a été sublimé directement dans la cuve de 90 l. Les courbes correspondantes montrent que la décroissance est plus rapide dans les premiers instants; pour la courbe 5, la décroissance devient linéaire (pente =  $0,85 \times 10^{-4}$ ) au bout d'une heure.

H. KENNEDY (1916) et P. J. NOLAN (1933-1941) ont montré que la concentration de noyaux enfermés dans une enceinte décroissait en fonction du temps suivant l'équation :

$$\frac{dn}{dt} = -\sigma n^2 - \beta n \quad [6]$$

où  $\sigma$  est le coefficient de coagulation et  $\beta$  le coefficient de sédimentation et de diffusion sur les parois du récipient.

Dans cette formule, on admet qu'il existe une convection suffisante pour que la concentration soit uniforme, sauf dans la couche en contact avec la paroi. Il faut distinguer dans le coefficient  $\beta$  le terme correspondant à la diffusion

$$\beta_d = \frac{D}{a} \cdot \frac{A}{V}$$

et le terme correspondant à la sédimentation

$$\beta_s = \frac{c}{h}$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion,  $a$  l'épaisseur de la couche de contact,  $c$  la vitesse de chute,  $h$  la hauteur du récipient,  $A$  et  $V$  l'aire de la surface

et le volume du récipient. Le coefficient de coagulation est donné par l'équation de SMOLUCHOWSKI :

$$\sigma = 8 \pi r D$$

où  $r$  est le rayon du noyau.

L'intégrale de l'équation [6] est :

$$n = \frac{n_0 e^{-\beta t}}{1 + \frac{\sigma}{\beta} n_0 (1 - e^{-\beta t})} \quad [7]$$

d'où l'on déduit :

$$\text{Log} \frac{n}{n_0} = -\beta t - \text{Log} \left[ 1 + \frac{\sigma}{\beta} n_0 (1 - e^{-\beta t}) \right],$$

fonction dont la pente est :

$$-\beta - \frac{\sigma n_0 e^{-\beta t}}{1 + \frac{\sigma}{\beta} n_0 (1 - e^{-\beta t})}$$

elle est égale à  $-\beta$  au temps  $t = 0$ , puis croît et tend vers la limite  $-\beta$  lorsque  $t$  croît.

La grande vitesse de décroissance constatée dans les expériences 4 et 5 serait donc due à une grande concentration de noyaux au départ, le terme  $\sigma n_0$  étant prépondérant.

A partir d'une certaine concentration, le terme  $\sigma n$  devient négligeable par rapport à  $\beta$  et la formule [7] se réduit à :

$$n = n_0 e^{-\beta t} \quad [7 \text{ bis}]$$

Cette conclusion est valable, à un degré moindre, pour la courbe 3 pour laquelle la concentration était plus petite et où le terme  $\sigma n$  est devenu négligeable après une heure de stockage. On peut mesurer pour cette courbe, la pente à l'origine qui donne :

$$\sigma n_0 + \beta = 7,6 \times 10^{-4}.$$

La pente de la partie rectiligne conduit à  $\beta = 1,2 \times 10^{-4}$  d'où l'on déduit  $\sigma n_0 = 6,4 \times 10^{-4}$ .

Si l'on prend comme rayon moyen des particules  $r = 400 \text{ \AA}$ ,  $\sigma$  serait égal d'après NOLAN et KUFFEL (1955) à  $10^{-9}$ , ce qui conduirait à un nombre initial de particules  $n_0 = 6,4 \times 10^5$  par centimètre cube. Rappelons que cette concentration a été obtenue en prélevant un volume de 1 l dans la hotte de 900 l où avait brûlé 1 g de charbon à 2 % d'iodure d'argent et en l'injectant dans la cuve de 90 l. On en déduit le nombre  $N_0$  de particules

émises par la combustion, soit par gramme d'iodure  $2,5 \times 10^{15}$  noyaux. Précisons que ce nombre de particules correspond au nombre de noyaux actifs dans le brouillard surfondu à  $-14$  °C. VONNEGUT (1949), SOULAGE (1955 *b*) et SERPOLAY (1956) donnent pour cette même température une concentration en noyaux comprise entre  $10^{14}$  et  $10^{15}$ , la concentration variant d'ailleurs avec la vitesse du vent dans lequel brûle le charbon. Dans nos expériences, la ventilation étant très énergique, il n'est pas étonnant de trouver un nombre légèrement supérieur. De plus, la valeur de  $\sigma$  à partir de laquelle  $N_0$  a été calculé dépend de la dimension des noyaux qui n'est pas connue exactement et qui peut varier entre des limites assez larges pour une fumée donnée.

D'une façon générale, les courbes de décroissance montrent que pour des concentrations pas trop élevées de particules (1), on a :

$$\frac{d\left(\log \frac{n}{n_0}\right)}{dt} = -\beta t. \quad [8]$$

Nous avons vu que  $\beta$  a été trouvé égal deux fois à  $2 \times 10^{-4}$ ; une fois à  $1,2 \times 10^{-4}$  et  $0,85 \times 10^{-4}$  soit une moyenne de  $1,5 \times 10^{-4}$ , valeur en accord avec celle donnée par VONNEGUT pour une dimension de particules de 400 Å.

## ÉTUDE DE L'ACTIVITÉ DE FUMÉES LIBRES D'IODURE D'ARGENT SOUMISES PRÉALABLEMENT A DES CONDENSATIONS DE VAPEUR D'EAU

La technique opératoire a déjà été décrite page 35.

Nous avons rapporté dans le tableau VIII les résultats portant sur neuf expériences dans lesquelles la fumée traitée a séjourné de deux à six minutes dans la vapeur d'eau vers 0 °C. L'expérience n° 9 a été réalisée avec de l'iodure d'argent sublimé à partir de poudre commerciale.

Le taux de diminution du nombre de cristaux induits par rapport au prélèvement témoin a été calculé pour chaque série de photos pris au même moment à partir du début de l'injection. On a constaté que les taux sont grossièrement constants, et nous admettrons, comme précédemment, que la loi de variation du nombre de cristaux en fonction du temps est la même pour la fumée traitée que pour la fumée témoin.

---

(1) C'est-à-dire pour  $\sigma n \ll \beta$  soit en prenant :  $\beta = 1,5 \times 10^{-4}$  et  $\sigma = 10^{-9}$ ;  $\ll 1,5 \times 10^5$  par  $\text{cm}^3$ .

TABLEAU VIII

## Désactivation de fumées libres d'iodure d'argent.

| Expé-<br>rience<br>n° | Tempé-<br>rature $\theta$<br>du<br>brouillard<br>(°C) | Temps<br>en<br>secondes | Traitement                                            | Nombre<br>de cristaux<br>par<br>cm <sup>2</sup> | Taux<br>apparent<br>de désac-<br>tivation<br>(%) | Taux<br>apparent<br>moyen<br>(%) |
|-----------------------|-------------------------------------------------------|-------------------------|-------------------------------------------------------|-------------------------------------------------|--------------------------------------------------|----------------------------------|
| 1                     | — 14                                                  | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)  | 0,57                                            | 85,5                                             | 86                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 0,29                                            | 89                                               |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 0,63                                            | 65                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 20                      | Fumée témoin 25 mn<br>après formation                 | 3,94                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 2,68                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 1,78                                            |                                                  |                                  |
| 2                     | — 14                                                  | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)  | 3,36                                            | 28                                               | 41                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 3,28                                            | 49                                               |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 1,84                                            | 45                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 20                      | Fumée témoin 25 mn<br>après formation                 | 4,65                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 6,35                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 3,36                                            |                                                  |                                  |
| 3                     | — 14                                                  | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)  | 0,59                                            | 78,5                                             | 82                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 0,74                                            | 88                                               |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 0,51                                            | 79                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 20                      | Fumée vapeur d'eau<br>à 0 °C 25 mn après<br>formation | 2,78                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 5,38                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 2,46                                            |                                                  |                                  |
| 4                     | — 14                                                  | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)  | 0,92                                            | 69                                               | 64                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 1,08                                            | 48,5                                             |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 0,51                                            |                                                  |                                  |
|                       | — 14                                                  | 20                      | Fumée témoin 15 mn<br>après formation                 | 3                                               |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 2,01                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 2,04                                            |                                                  |                                  |
| 5                     | — 14,5                                                | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(2 mn)  | 2,07                                            | — 3,5                                            | 0                                |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 2,95                                            | — 12,5                                           |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 1,75                                            | + 16                                             |                                  |
|                       | — 14,5                                                | 20                      | Fumée témoin 32 mn<br>après formation                 | 2                                               |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 2,62                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 2,03                                            |                                                  |                                  |
| 6                     | — 13,3                                                | 20                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)  | 0,42                                            | 75                                               | 77                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 0,48                                            | 78                                               |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 0,44                                            | 77,5                                             |                                  |
|                       | — 13,3                                                | 20                      | Fumée témoin 42 mn<br>après formation                 | 1,68                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                       | 2,20                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 1,90                                            |                                                  |                                  |
| 7                     | — 13,8                                                | 15                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(6 mn)  | 0,3                                             | 99                                               |                                  |
|                       |                                                       | 30                      |                                                       | 2,9                                             | 94                                               |                                  |
|                       |                                                       | 45                      |                                                       | 2,9                                             | 92                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 60                      | Fumée témoin 31 mn<br>après formation                 | 2,4                                             | 91,5                                             | 94                               |
|                       |                                                       | 120                     |                                                       | 0,5                                             | 94                                               |                                  |
|                       |                                                       | 15                      |                                                       | 40,9                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 30                      |                                                       | 47,4                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 45                      |                                                       | 36,9                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                       | 28,7                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 120                     |                                                       | 8,4                                             |                                                  |                                  |

TABLEAU VIII (Suite)

| Expé-<br>rience<br>n° | Tempé-<br>rature $\theta$<br>du<br>brouillard<br>(°C) | Temps<br>en<br>secondes | Traitement                                                  | Nombre<br>de cristaux<br>par<br>cm <sup>3</sup> | Taux<br>apparent<br>de désac-<br>tivation<br>(%) | Taux<br>apparent<br>moyen<br>(%) |
|-----------------------|-------------------------------------------------------|-------------------------|-------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------|--------------------------------------------------|----------------------------------|
| 8                     | — 13,6                                                | 90                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)        | 0,7                                             | 82                                               | 84                               |
|                       |                                                       | 150                     |                                                             | 0,42                                            | 86                                               |                                  |
|                       | — 13,6                                                | 90                      | Fumée témoin 21 mn<br>après formation                       | 3,95                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 150                     |                                                             | 2,7                                             |                                                  |                                  |
| 9                     | — 14                                                  | 25                      | Fumée injectée dans<br>vapeur d'eau à 0 °C<br>(5 mn)        | 0,44                                            | 99                                               | 80                               |
|                       |                                                       | 45                      |                                                             | 0,35                                            | 59                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 25                      | Fumée témoin 30 mn<br>après formation                       | 24,9                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 45                      |                                                             | 0,86                                            |                                                  |                                  |
| 10                    | — 14                                                  | 20                      | Fumée injectée à 0 °C<br><i>sans vapeur d'eau</i><br>(5 mn) | 4,25                                            | 45,5                                             | 45                               |
|                       |                                                       | 40                      |                                                             | 3,86                                            | 27                                               |                                  |
|                       | — 14                                                  | 60                      |                                                             | 3,44                                            | 52,5                                             |                                  |
|                       |                                                       | 20                      | Fumée témoin 30 mn<br>après formation                       | 7,80                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 40                      |                                                             | 4,9                                             |                                                  |                                  |
| 11                    | — 14,5                                                | 60                      | Fumée injectée à 0 °C<br><i>sans vapeur d'eau</i><br>(5 mn) | 4,31                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 15                      |                                                             | 1,82                                            | 55                                               |                                  |
|                       | — 14,5                                                | 30                      | Fumée témoin 30 mn<br>après formation                       | 2,5                                             | 50                                               | 55                               |
|                       |                                                       | 45                      |                                                             | 2,33                                            | 59                                               |                                  |
|                       | — 14,5                                                | 60                      |                                                             | 1                                               | 60                                               |                                  |
|                       |                                                       | 15                      |                                                             | 4,10                                            |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 30                      |                                                             | 5                                               |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 45                      |                                                             | 5,7                                             |                                                  |                                  |
|                       |                                                       | 60                      |                                                             | 2,2                                             |                                                  |                                  |

Les taux moyens de désactivation apparente ont été dans l'ordre croissant (en pourcentage) :

0, 41, 64, 77, 80, 82, 84, 86, 94.

Dans deux expériences (nos 10 et 11), l'air pollué d'iodure a été injecté dans la cuve à 0 °C en l'absence de brouillard.

Il est certain que l'injection d'un litre d'air à température ambiante (+ 20 °C dans la cuve à 0 °C) a créé un brouillard fugace; nous avons voulu vérifier si la condensation temporaire créée par l'injection elle-même causait une diminution du nombre de noyaux actifs. L'expérience a donné les taux moyens de désactivation apparente : 45 et 55 %.

Les taux qui viennent d'être rapportés ne tiennent pas compte du fait que les fumées témoins et traitées n'ont pas séjourné pendant le même temps dans leur cuve respective et que, par ailleurs, le brouillard de vapeur d'eau a augmenté la précipitation (indépendamment de son effet désactivant) sur les particules d'iodure.

Le taux de décroissance  $\tau_1$  de la concentration de particules de la fumée témoin après un temps  $t_1$  est donné par la formule :

$$\tau_1 = 100 (1 - e^{-\beta t_1})$$

dans laquelle on prendra pour  $\beta$  la valeur déduite des expériences précédentes soit  $\beta = 2 \times 10^{-4}$ . De même pour la fumée traitée ayant séjourné un temps  $t_2$  dans le brouillard, nous appliquerons la même équation en prenant  $\beta = 5 \times 10^{-4}$ , valeur correspondant comme on l'a vu (p. 40) à la décroissance dans un brouillard composé de gouttelettes de  $5 \mu$  et contenant 1 g d'eau par mètre cube. Il est facile de déduire le taux réel de désactivation  $\tau_d$  dû au brouillard, en fonction du taux de décroissance apparent  $\tau_a$ ; le calcul donne :

$$\tau_d = \frac{\tau_a}{100} (100 - \tau_1) + \tau_1 - \tau_2.$$

Le tableau ci-dessous donne les divers taux (en pourcentage) de décroissance pour les onze expériences :

| N° de l'expérience | 1  | 2  | 3  | 4    | 5  | 6    | 7    | 8  | 9  | 10 | 11 |                                                                      |
|--------------------|----|----|----|------|----|------|------|----|----|----|----|----------------------------------------------------------------------|
| $\tau_1$           | 26 | 26 | 26 | 16,5 | 31 | 35,5 | 31   | 22 | 30 | 30 | 30 | Taux de décroissance de la fumée témoin après un temps de stockage.  |
| $\tau_2$           | 14 | 14 | 14 | 14   | 6  | 14   | 16,5 | 14 | 14 | 6  | 6  | Taux de décroissance de la fumée injectée dans le brouillard à 0 °C. |
| $\tau_a$           | 86 | 41 | 82 | 64   | 0  | 77   | 94   | 84 | 80 | 45 | 55 | Taux apparent de désactivation.                                      |
| $\tau_d$           | 75 | 42 | 73 | 56   | 25 | 71   | 80   | 73 | 72 | 55 | 62 | Taux réel de désactivation.                                          |

Expériences 10 et 11 : Sans générateur de vapeur d'eau dans la cuve à 0 °C.

Avant d'admettre que la désactivation est bien provoquée par des condensations de vapeur d'eau sur les noyaux, on peut objecter qu'il est également possible que la décroissance d'activité soit due à une précipitation accrue sur les parois par suite de la turbulence créée par le générateur de vapeur d'eau; de plus, le calcul qui a tenu compte de la présence des gouttelettes de brouillard comme élément précipitant, repose sur des hypothèses non contrôlées sur la dimension et le nombre de gouttelettes. Nous devons toutefois remarquer que dans les deux dernières expériences pour lesquelles aucun brouillard n'était entretenu dans la cuve, les objections précédentes ne peuvent être retenues, or les taux de désactivation ont été quand même de l'ordre de 60 %.

Il semble donc bien que l'hypothèse d'une désactivation par condensation préalable de vapeur d'eau sur les noyaux soit valable. Dans le cas où un brouillard était entretenu par un générateur, la pression de vapeur d'eau dans l'enceinte était celle qui correspond à la saturation; on ne peut toutefois affirmer que les noyaux aient bien été le siège de condensation et que des gouttelettes s'y soient effectivement formées, mais FACY (1955) a montré que des gouttelettes en voie de condensation captaient les particules submicroscopiques avoisinantes par un mécanisme de cinétique moléculaire. Ainsi le processus réel ne serait pas une condensation directe de vapeur d'eau sur les noyaux mais plutôt une capture des noyaux par des gouttelettes en évolution. De même lorsqu'aucun brouillard n'était entretenu dans la chambre froide, l'injection d'air pollué chaud a créé un brouillard fugace et on peut penser qu'un certain nombre de particules d'iodure d'argent aient pu être captées par les gouttelettes au cours de leur formation.

Nous avons vu que VONNEGUT trouvait expérimentalement comme coefficient de décroissance  $\beta$  la valeur  $5,7 \times 10^{-3}$ . Si l'on admet que la composante due à la diffusion des particules sur les parois et à la précipitation sur les gouttelettes est égale à  $\beta_1 = 5 \times 10^{-4}$ , la composante relative à la désactivation par condensation a comme valeur  $\beta_d = 5,2 \times 10^{-3}$ . Ce coefficient conduit à une désactivation d'environ 80 % des noyaux pour un séjour de cinq minutes dans le brouillard; ce temps correspond bien à la limite supérieure de nos valeurs expérimentales de  $\tau_d$ .

## CONCLUSIONS

Nos expériences et celles de VONNEGUT donnent pour vitesse de décroissance du nombre de noyaux actifs en présence de brouillard, une valeur supérieure à celle qui est déduite des phénomènes classiques de diffusion. Sans préjuger de son mode d'action, on est amené à considérer un pouvoir désactivant de la vapeur d'eau sur les noyaux. L'influence de ce phénomène peut être importante pour les expériences de modification des nuages. L'efficacité de l'insémination d'un nuage sera en effet conditionnée :

1° Par la diffusion des particules : on a vu que la diffusion des noyaux dans le nuage était d'autant plus grande que la vitesse de nucléation était faible, c'est-à-dire que la température du nuage était élevée.

2° Par la désactivation par suite de condensation de vapeur d'eau au sein du nuage; à  $-9^\circ\text{C}$  par exemple, le temps moyen d'action des noyaux étant d'environ cinq minutes, en même temps que les particules diffuseront, une certaine proportion sera désactivée.

3° Par la température du nuage : les dénombrements de noyaux montrent que la proportion de noyaux actifs augmente beaucoup quand la température

décroît. VONNEGUT (1948) trouve, par exemple, mille fois plus de noyaux actifs à  $-20^{\circ}\text{C}$  qu'à  $-10^{\circ}\text{C}$ . SOULAGE (1955 *b*) donne pour les mêmes températures un rapport égal à 100.

Étant données les techniques de comptage (opérant sur des particules libres en vase clos), on peut se demander si les variations du nombre de noyaux actifs en fonction de la température ne sont pas dues en partie à une plus ou moins grande vitesse de nucléation des particules. En effet, un nombre d'autant plus grand de noyaux échapperont à une action glaciogène (par suite de précipitation sur les parois et désactivation par le brouillard) que la vitesse de nucléation sera faible, c'est-à-dire la température du nuage plus élevée.

## CHAPITRE III

# ÉTUDE DE L'ACTIVITÉ GLAÇOGÈNE DE L'IODURE D'ARGENT DÉPOSÉ SUR LAME DE VERRE

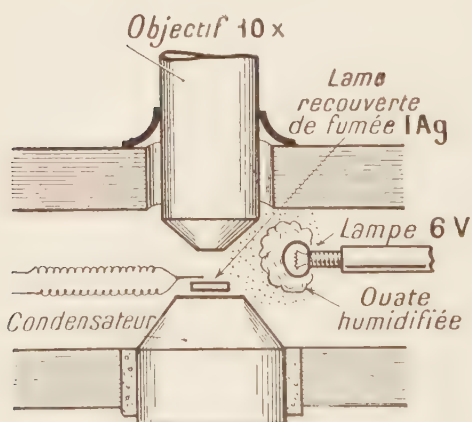
### DISPOSITIFS EXPÉRIMENTAUX

Dans le but d'étudier le phénomène avec plus de sécurité, nous avons voulu faire varier les conditions expérimentales en nous servant de deux dispositifs différents :

1° La petite chambre froide, qui a été déjà décrite au chapitre premier (p. 11, *fig. 1 bis*) a d'abord été utilisée. Les lames de verres sur lesquelles sont déposées les particules d'iodure d'argent sont constituées par des petites plaques rectangulaires de  $5 \times 10$  mm et de 2 mm d'épaisseur; elles sont placées directement sur le condenseur; la soudure du couple thermoélectrique est mise en contact avec la face supérieure de la lame. L'observation microscopique est faite avec un objectif  $10 \times$ .

Deux systèmes humidificateurs différents ont été utilisés dans le but de projeter sur la lame des gouttelettes d'eau surfondue :

a) Une petite lampe (6 V, 0,3 A) chauffée sous une tension réglable est



entourée d'un manchon d'ouate imbibée d'eau; il se forme autour de la lampe un brouillard qu'il s'agit de faire précipiter sur la lame. La difficulté est de réaliser une précipitation homogène. En général, la partie de la lame la plus proche du générateur, recevant une quantité trop grande d'eau, ne tarde pas à être le siège d'une congélation spontanée. Par contre, la zone la plus éloignée ne reçoit pratiquement pas de gouttes. Un réglage judicieux de la position de la lampe et de son chauffage

permet d'observer commodément, sur une large zone médiane, la chute des gouttelettes;

b) L'humidification peut être obtenue en insufflant par la bouche de l'air chaud et humide. Le réglage de l'orientation du tuyau de caoutchouc par lequel le souffle est introduit dans la cuve et du débit de l'air humide, permet de disposer d'un système très souple d'humidification. Suivant les cas, on peut observer la chute de gouttes sur la lame ou bien provoquer directement la condensation d'une multitude de très fines gouttelettes sur la surface de la lame.

2° Une platine réfrigérante de KOFLER (fab. REICHERT) a également été utilisée (*fig. 17*). Le refroidissement commode, et pouvant être très rapide, est réalisé par détente de gaz carbonique dans la masse même de la platine. L'humidification est obtenue en soulevant légèrement, et pendant deux à trois secondes, la plaque de verre qui sert de couvercle à la platine; dans ces conditions, la lame est le siège de très fines condensations de vapeur d'eau sur toute sa surface. Ce procédé ne permet généralement pas d'observer la précipitation de gouttes d'eau sur la lame en expérience.

## RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX

### 1° Activité glaçogène de fumées d'iodure d'argent recueillies sur lame de verre.

Les lames sont polluées en les exposant quelques instants à de la fumée provenant, soit de la combustion de charbon BIDAULT imprégnés à 2 ou 5 % d'iodure d'argent, soit de la sublimation de cristaux d'iodure d'argent commercial. La fumée jaune déposée sur la lame est, dans tous les cas parfaitement visible à l'œil nu; examinée au microscope, elle présente un aspect finement granuleux homogène (*fig. 18*).

#### a) Lames fraîchement polluées n'ayant subi aucun traitement.

La lame venant d'être enfumée est introduite dans la chambre froide dont la température est maintenue entre  $-6$  et  $-12$  °C. Après avoir attendu pendant quelques minutes la mise en équilibre thermique de la lame, la vapeur d'eau est introduite dans l'enceinte. Nous distinguerons les deux cas suivants :

1. Des gouttes d'eau surfondue tombent sur la lame polluée : les observations faites au cours de plusieurs dizaines d'expériences montrent le caractère très aléatoire des congélations. Plusieurs cas sont envisagés :

— toutes les gouttes tombant sur la couche d'iodure restent liquides et s'évaporent sans se congeler à des températures où l'action glaçogène devrait normalement être efficace. Si l'on veut provoquer la congélation des gouttelettes immédiatement après leur contact avec la surface polluée, la température doit être abaissée jusqu'à  $-16$  à  $-25$  °C suivant les cas;

— certaines gouttes peuvent se congeler pendant que d'autres restent liquides et s'évaporent; c'est le cas le plus fréquemment observé;

— toutes les gouttes tombant en pluie se congèlent dès leur arrivée sur la lame.

On peut se demander si la non-congélation des gouttes n'est pas due au fait qu'elles s'évaporent trop vite pour avoir le temps de se congeler. Il ne semble pas que ce soit là la véritable cause d'inaction, car de nombreuses observations ont pu montrer que de grosses gouttes pouvaient séjourner au contact de l'iodure pendant plusieurs minutes en se maintenant en surfusion. Les phénomènes ne paraissent pas dépendre du mode de pollution, les expériences ayant donné les mêmes résultats aussi bien avec la fumée en provenance de charbons imprégnés qu'avec de l'iodure directement sublimé. Peut-être s'agit-il d'une mouillabilité insuffisante de l'iodure d'argent vis-à-vis de l'eau.

2. Des gouttelettes d'eau sont directement condensées sur la lame; dans ce cas un nombre plus ou moins grand de cristaux de glace apparaissent disséminés sur la plaque (*fig. 21*). Rappelons que toute sa surface est couverte d'une couche nettement visible d'iodure d'argent; il semble donc que toute l'aire polluée ne soit pas également active. On peut penser que les points privilégiés où apparaissent les cristaux glacés sont ceux pour lesquels la surface possède des propriétés particulières. Mais il est également concevable que les congélations soient amorcées plus rapidement sur les plus grosses gouttelettes; celles-ci se congelant les premières donneraient naissance à des cristaux pendant que les autres gouttelettes, plus petites, s'évaporeraient rapidement au profit de la glace. Cette dernière hypothèse paraît infirmée par l'expérience, en effet nous avons pu constater que les cristaux se développaient uniquement, dans certains cas, sur une zone ou une ligne bien définie de la surface polluée et que lors des essais successifs la glace réapparaissait toujours dans la même région (*fig. 25 a et 25 b*). Si la probabilité des congélations dépendait uniquement des dimensions des gouttelettes condensées, les cristaux devraient se manifester à peu près uniformément sur la lame; il semble au contraire que la formation de glace en des sites privilégiés dépende bien de propriétés particulières de ces derniers. Ce phénomène peut être dû à une orientation particulière des microcristaux sur le verre à l'endroit des raies ou des traces laissées par l'essuyage de la lame.

Il est possible que le fait d'accumuler les particules d'iodure en une couche de fumée relativement épaisse change la nature de la surface et diminue le nombre de sites favorables à une action glaçogène. CWILONG (1949) étudiant l'activité de micro-cristaux d'iodure d'argent produits par sublimation et condensation sur des surfaces polies, trouve que la surface la

plus active est celle qui est juste « sensibilisée » par l'iodure d'argent, c'est-à-dire où les cristaux sont invisibles. Sur de telles surfaces fraîchement polluées, l'action glaçogène commencerait dès  $-2,9^{\circ}\text{C}$ .

MARUYAMA (1955) observant des particules de fumée d'iodure d'argent sur des plaques de verre recouvertes d'un film de collodion, trouve que la température critique d'action est de  $-5,5^{\circ}\text{C}$  et que le nombre de noyaux de congélation est remarquablement petit par rapport au nombre total de particules (de l'ordre de  $1/1\,000$  à  $-10^{\circ}\text{C}$ ).

MONTMORY (1956) provoquant la congélation d'eau surfondue sur des surfaces d'iodure d'argent déposé sur mica a montré que l'épitaxie de la glace sur l'iodure se fait suivant des plans d'accrolement bien définis. De plus, WEICKMANN (1951) admet que, à une température déterminée, pour qu'un cristal de glace serve de germe de congélation, sa taille doit être au moins égale à celle d'un germe de dimension critique. La relation entre la grosseur de ce cristal et sa température efficace peut se calculer par la formule de J.-J. THOMSON qui s'écrit pour la glace :

$$T = 273 - \frac{2\sigma M}{rQd}$$

où  $T$  représente la température absolue d'action d'un germe de rayon  $r$ ,  $\sigma$  l'énergie superficielle eau-glace (voisine de  $20\text{ ergs/cm}^2$ ),  $Q$  la chaleur de fusion moléculaire de la glace ( $6 \times 10^{10}\text{ ergs}$ ),  $d$  sa densité (0,92),  $M$  sa masse moléculaire (18). Ainsi la dimension critique du germe de glace serait d'environ  $90\text{ \AA}$  à  $-4^{\circ}\text{C}$ , de  $35\text{ \AA}$  à  $-10^{\circ}\text{C}$  et de  $17\text{ \AA}$  à  $-20^{\circ}\text{C}$ .

Il apparaît donc que deux conditions doivent être réunies simultanément pour que l'action glaçogène d'un élément soit efficace à une température donnée; à savoir :

— *une condition d'épitaxie* : c'est-à-dire, comme l'expliquent ROYER (1928) et FRIEDEL (1926), que la répartition des nœuds dans les réseaux du substrat et du dépôt orienté (ici la glace) doit être telle que deux mailles planes simples ou multiples simples soient, à une certaine tolérance près, identiques dans les deux cristaux.

Cette condition est réalisée pour l'iodure d'argent, aussi bien pour la variété cubique  $\beta$  (type blende) que pour la variété  $\gamma$  (type würtzite) comme l'a montré MONTMORY (1956), les paramètres réticulaires de l'iodure d'argent ( $4,58\text{ \AA}$ ) étant dans les deux cas très voisins de celui de la glace ( $4,51\text{ \AA}$ ); la discordance entre les paramètres est inférieure à 2 %.

— *une condition de dimension du germe* : la température à laquelle un élément glaçogène sera actif dépendra de la dimension de l'aire sur laquelle la coïncidence d'un certain nombre de mailles du substrat et de la glace pourra se faire sans que la discordance dépasse une limite que l'on admet être de l'ordre de 12 %.

Ainsi pour l'iodure d'argent, cette discordance limite est atteinte quand le germe atteint une taille d'environ 40 Å ce qui correspond au seuil d'action de  $-4^{\circ}\text{C}$ . Pour une température supérieure, la coïncidence des nœuds du réseau cristallin de l'iodure d'argent et de la glace n'est plus assez bonne pour que l'orientation des molécules d'eau soit favorisée.

On peut donc penser que les points de congélation, tels qu'ils ont été mis en évidence dans nos expériences correspondent à des lieux où les plans réticulaires sont favorables à l'épitéxie et dont les dimensions sont au moins égales à celles d'un germe de congélation pour la température de l'expérience.

*b) Lames polluées ayant subi une condensation de vapeur d'eau suivie d'évaporation.*

Les lames dont la surface vient d'être polluée d'iodure d'argent sont refroidies de façon que la vapeur d'eau atmosphérique vienne s'y condenser; après quoi on laisse les lames reprendre la température ambiante et on attend l'évaporation de l'eau condensée.

L'observation microscopique montre que l'aspect des surfaces ayant subi ce traitement est très différent suivant que l'iodure a été déposé par sublimation de cristaux d'iodure commercial ou obtenu à partir de charbon BIDAULT imprégné d'iodure d'argent.

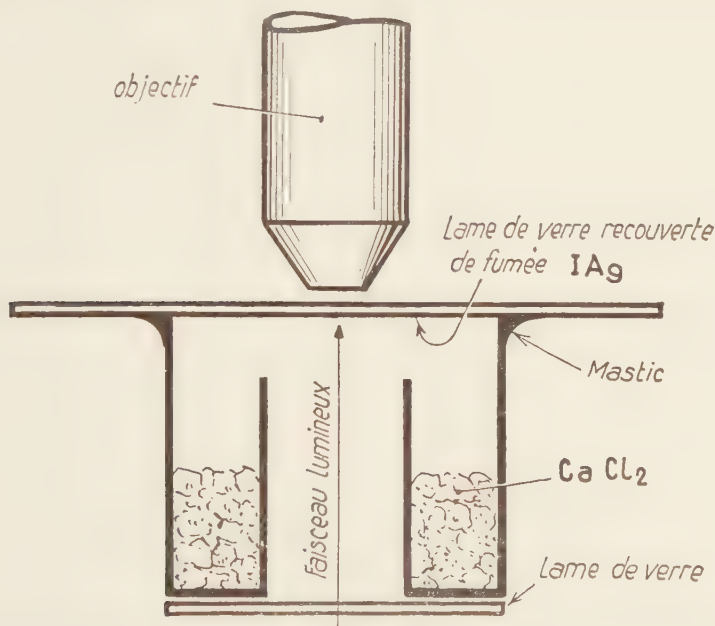
Dans le premier cas, la condensation de l'eau suivie de son évaporation n'a créé le plus souvent que des changements d'homogénéité du dépôt : il y a eu des regroupements qui ont été obtenus par suite de la mobilité des particules dans l'eau de condensation et des phénomènes d'attraction superficielle au moment de l'évaporation.

Par contre si la fumée d'iodure d'argent a été produite en portant à l'incandescence du charbon BIDAULT imprégné à 2 ou 5 % d'iodure d'argent, le dépôt qui avait un aspect identique au précédent lorsqu'il venait d'être recueilli sur la lame (c'est-à-dire granuleux et homogène) présente après la condensation-évaporation d'eau de nombreuses aiguilles (*fig. 19*) dont certaines sont parfois visibles à l'œil nu; si l'opération est réalisée sous l'objectif du microscope, on peut assister à la transformation cristalline; les aiguilles prennent naissance au moment de l'évaporation de l'eau de condensation. De plus la condensation de vapeur d'eau sur la fumée provoque un changement de couleur très net, celle-ci vire du jaune au jaune vert puis au cours de l'évaporation, la fumée reprend sa teinte initiale. Nous avons pu constater que la formation d'aiguilles pouvait également avoir lieu spontanément après un certain temps de séjour dans l'air ambiant dont le degré hygrométrique est voisin de 80 % (*fig. 20*).

Nous avons montré que dans ce cas, l'humidité atmosphérique était responsable de la transformation cristalline. L'expérience suivante a été faite : une lame de verre recouverte de fumée est disposée sur une petite cuve contenant un déshydratant ( $\text{CaCl}_2$ ) de façon que seule une zone centrale

soit à l'abri de l'humidité atmosphérique, le reste de la surface étant en contact avec l'air ambiant. On constate que cette dernière partie ne tarde pas à être recouverte d'aiguilles alors que celle qui est en contact avec l'air sec garde son aspect granuleux initial pendant plusieurs mois. La fumée d'iodure d'argent ainsi que le charbon à partir duquel elle est produite ont été soumis à des analyses dont le détail sera rapporté au chapitre IV.

Disons pour le moment qu'une forte proportion de sel de plomb a pu être décelé aussi bien dans le charbon que dans la fumée; outre des traces d'autres éléments, les ions  $K^+$  et  $Na^+$  ont été trouvés dans l'eau de lavage du charbon (1,5 % de  $K^+$ ).



Dispositif pour la mise en évidence du rôle de l'humidité atmosphérique.

Ainsi il est vraisemblable de penser qu'au cours de la sublimation de l'iodure d'argent, de l'iodure de plomb et de potassium ont pu se former. L'iodure de potassium a d'ailleurs été identifié facilement dans les spectres de diffraction de rayons X obtenus à partir des fumées. La transformation cristalline observée serait due à la présence de l'iodure de potassium qui donnerait avec l'eau de condensation, une solution capable de dissoudre en partie l'iodure d'argent et l'iodure de plomb. Ces sels ou sels doubles qui peuvent résulter de leur association avec l'iodure de potassium recristalliseraient sous forme d'aiguilles lors de l'évaporation. Nous verrons plus loin, l'interprétation à laquelle ces résultats nous conduisent, pour expliquer les phénomènes de désactivation.

Il est difficile de comparer l'activité de surfaces polluées d'iodure d'argent ayant subi l'épreuve d'une condensation-évaporation de vapeur d'eau, par rapport à celle de surfaces fraîches, étant donné le caractère aléatoire des congélations sur ces dernières. En particulier, la précipitation de gouttelettes surfondues sur la surface fraîche ne provoquant pas systématiquement leur congélation, il ne nous a pas été possible de contrôler avec certitude l'effet désactivant du traitement. Par contre, si les cristaux de glace sont induits à partir de condensations formées directement sur la lame dans les conditions exposées au § a)-2, la comparaison du nombre et de la répartition des cristaux sur des lames fraîches et traitées peut donner une idée des conséquences du traitement. En effet, nous avons vu que des lames fraîchement polluées donnaient naissance à un nombre plus ou moins grand de cristaux disséminés d'une façon généralement homogène sur la surface. Or, nous avons pu constater, dans un certain nombre de cas, que des surfaces polluées d'iodure d'argent ayant subi le processus de condensation-évaporation de vapeur d'eau, ne donnaient plus que quelques rares cristaux (*fig. 22-23*) ou quelquefois même aucun. Ces résultats ont pu être observés aussi bien avec les fumées d'iodure d'argent pur qu'avec celles contenant les aiguilles d'iodure de plomb.

Dans d'autres cas, le nombre de cristaux induits sur la surface traitée était à peu près du même ordre de grandeur que pour une surface fraîche mais la répartition des cristaux était, en général, très hétérogène. Certaines zones étaient, par exemple, recouvertes de très nombreux cristaux alors que de larges emplacements, où l'iodure était pourtant nettement visible, restaient libres de glace.

L'impossibilité dans laquelle nous sommes de comparer l'activité d'une surface traitée avec celle qu'aurait eu cette même surface si elle avait été fraîche, ne nous permet pas de faire une étude quantitative utile des phénomènes. Cependant, l'ensemble des expériences nous a permis d'arriver aux conclusions suivantes :

— les surfaces polluées ne sont pas toutes également sensibles à l'effet désactivant du processus de condensation-évaporation de vapeur d'eau;

— certaines surfaces ont été désactivées totalement. La température a dû alors être abaissée jusqu'aux environs de  $-20^{\circ}\text{C}$  pour que l'activité se manifeste;

— il ne semble pas que le fait que l'iodure d'argent contienne ou non de l'iodure de plomb influe beaucoup sur sa faculté de désactivation.

#### c) Lames polluées ayant déjà provoqué une action glaçogène.

Les surfaces polluées de fumée d'iodure d'argent sont d'abord soumises à des condensations de vapeur d'eau vers  $-10^{\circ}\text{C}$  de façon à provoquer l'apparition de cristaux isolés. Les cristaux ainsi obtenus sont ensuite, soit

fondus et évaporés (par réchauffement de la lame), soit sublimés (à température constante).

Après l'une ou l'autre de ces opérations, une deuxième action glaçogène est provoquée dans les mêmes conditions que la première fois. Des clichés des lames sont pris après chaque action glaçogène ce qui permet de dénombrer les cristaux de glace et de repérer leur position. L'expérience montre que le nombre de cristaux induits la seconde fois est le plus souvent inférieur au nombre de cristaux induits initialement, bien que dans certains cas, leur nombre ait été égal ou même supérieur, mais il est rare de constater la coïncidence entre les emplacements des cristaux après chaque congélation (*fig. 26*). Sur certains clichés (*fig. 24*), les cristaux après leur fusion-évaporation ont laissé des traces bien visibles sur la couche d'iodure et l'on a pu constater que les secondes congélations se sont toujours produites en dehors des emplacements initiaux.

En résumé, il apparaît que des lieux où aucune congélation n'avait été amorcée la première fois peuvent induire des cristaux au cours d'actions ultérieures mais on ne retrouve généralement pas de glace sur un point ayant déjà agi. Ces résultats ont été trouvés valables aussi bien pour le processus fusion-évaporation que pour celui de sublimation de glace ainsi que pour les deux sortes de fumées étudiées (avec ou sans iodure de plomb).

## 2<sup>o</sup> Activité glaçogène de cristaux d'iodure d'argent déposés sur lame de verre.

Les cristaux d'iodure d'argent sont obtenus à partir du produit commercial finement broyé. Les grains déposés sur les lames de verre sont placés dans la petite chambre froide ou sur la platine réfrigérante de façon à provoquer sur eux une action glaçogène aux environs de  $-10^{\circ}\text{C}$ .

L'expérience montre que l'introduction d'air humide dans l'enceinte détermine l'apparition immédiate de glace sur les grains d'iodure.

Si les grains sont de dimension très différente, il arrive que les plus petits grains ne présentent aucune glaciation (*fig. 27*), dans ce cas il est possible que la croissance des cristaux de glace sur les gros grains assèche les grains voisins et les empêche de manifester ainsi leur activité glaçogène. D'ailleurs, si l'on tamise les grains de façon à obtenir une meilleure uniformité de dimension on constate que le développement de la glace se fait également sur tous les grains (*fig. 28 a*).

L'activité glaçogène des cristaux a été étudiée après que ceux-ci aient été soumis aux traitements suivants :

a) *Condensation-évaporation*. — La lame de verre sur laquelle ont été déposés les grains d'iodure est refroidie, à température positive, dans l'air ambiant de façon à créer à sa surface une condensation de l'humidité atmosphérique. On laisse ensuite évaporer l'eau de condensation par séchage à température ambiante.

On constate qu'après un tel traitement, tous les grains d'iodure ne sont plus également capables d'induire de la glace dans les mêmes conditions que les cristaux frais (c'est-à-dire vers  $-10^{\circ}\text{C}$ ). La croissance de glace peut encore se manifester sur un nombre restreint de cristaux, généralement les plus gros, mais le plus souvent la plupart des petites particules d'iodure d'argent (de dimension inférieure à une vingtaine de microns) sont devenues inactives. L'efficacité de la désactivation n'est d'ailleurs pas constante d'une expérience à l'autre; dans certains cas la désactivation a été totale et a englobé des grains de plus de  $50\ \mu$  de diamètre. La condensation d'eau sur fondue sur les grains d'iodure d'argent désactivés produit souvent une auréole de petites gouttelettes entourant la goutte qui s'est formée sur le noyau (*fig. 29*); tout se passe comme si la particule était devenue hygroscopique; de plus le contour du grain peut parfois se déformer et tendre vers une forme circulaire (*fig. 30*).

b) *Action glaçogène préalable suivie d'une sublimation de glace.* — Après avoir provoqué une action glaçogène sur les cristaux d'iodure, on laisse sublimer la glace qu'ils ont induite, après quoi le processus glaciation-sublimation est repris dans des conditions identiques. L'expérience montre qu'après chaque cycle d'opération, le nombre de cristaux actifs diminue. En général, ce sont les plus petits grains qui sont désactivés les premiers; ainsi des cristaux de  $10$  à  $20\ \mu$  peuvent être désactivés après une seule action glaçogène, alors que trois ou quatre cycles successifs doivent être nécessaires pour désactiver des grains de plus de  $50\ \mu$  (*fig. 33*).

Il semble que ce processus de désactivation soit moins efficace que celui de la condensation-évaporation puisque, pour ce dernier, un seul traitement est le plus souvent suffisant pour désactiver les cristaux.

Notons également qu'il arrive parfois que certains noyaux qui n'ont pas agi au cours d'une action, induisent de la glace au cours de l'action suivante. Il n'en reste pas moins vrai qu'après un certain nombre d'actions glaçogènes la plupart des cristaux finissent par devenir inactifs (*fig. 34*).

## CHAPITRE IV

# ESSAIS D'INTERPRÉTATION DE L'ÉVOLUTION DES PROPRIÉTÉS GLAÇOGÈNES DE L'IODURE D'ARGENT

Rappelons d'abord brièvement les théories qui ont été jusqu'ici émises pour expliquer le processus de l'action glaçogène :

### 1<sup>o</sup> Théorie basée sur l'épitaixie.

Nous avons déjà vu au chapitre III que la formation d'un germe de cristallisation pouvait être favorisée par l'introduction au sein de l'eau sur-fondue d'un corps solide dont le réseau cristallin présentait certains éléments de similitude avec celui de la glace. L'activité du noyau serait due à sa faculté d'orienter les molécules d'eau suivant un ordre préfigurant le modèle cristallin de la glace. Ainsi l'énergie de formation du germe de glace en serait-elle diminuée.

De plus, on a vu que pour qu'un germe puisse se développer à une température donnée, sa taille devait être supérieure à une dimension critique.

### 2<sup>o</sup> Théorie ionique.

Certains auteurs, dont BERNAL et FOWLER (cf. DARMOIS : 1943), BIGG (cf. MASON : 1953), DOUGET (1946), ont montré que la présence d'ions dans l'eau pouvait diminuer sa surfusion. MASON (1950) explique le phénomène en admettant une attraction d'un groupe de molécules d'eau par le champ de forces superficiel des ions.

HOSLER (1951) croit pouvoir expliquer l'action glaçogène de certains éléments (dont l'iodure d'argent) par leur dissolution par l'eau.

Reprenant les idées de WEYL (1950), il admet qu'une goutte d'eau présente à sa surface une couche électrique double constituée d'ions O et H. Une certaine épaisseur est nécessaire à cette couche pour maintenir au minimum son énergie superficielle. Lorsque la température décroît, l'épaisseur de la couche augmente. La transformation de l'eau en glace se traduisant par une augmentation de l'énergie superficielle, la couche double doit avoir une épaisseur suffisante pour que cette augmentation d'énergie puisse être

compensée par une diminution d'énergie interne, ce qui nécessite un volume suffisamment grand de la goutte ou une température assez basse. La présence d'ions libres réduisant l'énergie libre superficielle de la goutte, favoriserait sa congélation.

Cette théorie, appliquée au cas de l'iodure d'argent permettrait d'expliquer l'action des petits noyaux dont la taille est très faible devant celle de la goutte d'eau qui l'entoure. En effet, si l'on admet une solubilité de  $10^{-8}$  mol-g/l [HILL (1908)], un noyau d'environ 100 Å de diamètre peut se dissoudre complètement dans une gouttelette de 10  $\mu$ .

Si la solubilisation de l'iodure a lieu avant que l'action glaçogène ait pu se manifester, il est clair que la congélation de la goutte ne peut plus être le résultat d'un phénomène d'épitaixie.

Dans nos expériences relatives aux gros cristaux d'iodure d'argent, l'observation microscopique n'a pas pu mettre en évidence la condensation préalable de vapeur d'eau sur les grains. On pourrait donc avoir à faire, soit à une sublimation directe de vapeur d'eau (phénomène où la théorie ionique est inapplicable), soit à la condensation d'une pellicule invisible d'eau; dans ce cas, il faudrait admettre que la libération d'ions soit très rapide, car la congélation de gouttes au contact de gros cristaux d'iodure d'argent est le plus souvent instantanée.

### 3<sup>e</sup> Théorie basée sur l'agitation moléculaire.

Les théories précédentes peuvent difficilement expliquer la formation de glace sur des corps ne présentant aucune similitude de structure avec la glace, ou sur ceux dont la solubilité dans l'eau est très faible. C'est le cas de l'apparition de givre sur des surfaces de nature variée comme le fer, le bois, le verre, etc...

Si l'on considère que la surfusion est due au fait que l'agitation moléculaire de l'eau s'oppose à l'ordonnance des molécules suivant le réseau cristallin de la glace, on peut concevoir qu'une matière même amorphe et très peu soluble puisse favoriser la construction d'un germe de glace en diminuant à sa surface l'agitation des molécules. Comme suggère MASON (1953) les molécules d'eau peuvent être retenues à la surface du corps solide par des forces superficielles et être ainsi protégées en partie de l'agitation thermique. L'étude systématique de l'action glaçogène de tels supports n'ayant pas été entreprise, il n'a pas été possible jusqu'ici de contrôler l'exactitude de cette théorie.

SOULAGE (1956) étudiant les noyaux de congélation atmosphériques propose un certain nombre d'hypothèses pour expliquer pourquoi certains noyaux, après avoir produit de la glace n'agissent plus dans les mêmes conditions au cours d'actions ultérieures. Il attribue la diminution du pouvoir glaçogène à l'une des causes suivantes :

1° La matière active contiendrait une certaine quantité de substance soluble.

2° Des dépôts difficilement solubles s'accumuleraient à la surface du noyau.

3° La surface active se détériorerait progressivement.

**Première hypothèse : l'iodure d'argent contient des éléments solubles.**

Supposons avec SOULAGE qu'un élément soluble soit contenu dans le noyau; sa présence ne s'oppose pas à une première action glaçogène à certaines conditions. Il est évidemment nécessaire que des sites favorables soient apparents à la surface du noyau. Si le noyau agit comme un noyau de sublimation, on peut admettre que la condensation directe de la vapeur d'eau sous forme de glace se fera sans difficulté sur les centres actifs, mais si la formation de glace est précédée par la condensation d'une pellicule d'eau liquide (et il n'est pas possible, dans l'état actuel de nos connaissances de l'affirmer avec certitude) l'action glaçogène ne sera pas perturbée à condition que la congélation de l'eau de condensation soit assez rapide pour que la matière soluble n'ait pas le temps de s'y dissoudre.

Par contre, le séjour prolongé du noyau mixte dans l'eau (au cours d'une condensation au-dessus du seuil critique d'action ou d'une fusion de glace) provoquerait la dissolution de la partie soluble. Celle-ci se déposerait ensuite sur le noyau lors du séchage et masquerait les centres actifs. Ceux-ci ne retrouveraient leur activité normale que si une nouvelle condensation de vapeur d'eau vient dissoudre ce dépôt; mais alors le noyau actif ne se trouve plus en présence d'eau pure mais d'une solution saline dont la concentration est maximale au voisinage du noyau. L'activité glaçogène dépendra alors essentiellement de la plus ou moins grande concentration de cette solution.

LAFARGUE (1952) a montré que la présence de sel dissous en faible concentration ne perturbait pratiquement pas la surfusion des gouttes d'eau. L'inactivité du noyau ne pourrait donc s'expliquer que si la solution était suffisamment concentrée, ce qui nécessiterait une masse importante de matière soluble et une quantité d'eau condensée assez faible.

Cette hypothèse nous a amené à procéder à un certain nombre d'analyses dans le but de vérifier si l'iodure d'argent contenait des éléments étrangers pouvant être rendus responsables des désactivations.

La recherche des cations a été faite :

1° *Sur le charbon à partir duquel les fumées d'iodure d'argent étaient produites :*

L'analyse chimique effectuée sur les cendres du charbon a décelé une proportion de 1,65 % d'ion plomb. Il est possible que cet élément ait été

mélangé au charbon sous forme d'oxyde, afin de favoriser sa combustion. D'autres cations, mais en plus faibles concentrations ont été identifiés (Fe, Ca,  $\text{SiO}_2$ ).

Ces résultats ont été confirmés par l'analyse spectrophotométrique des cendres : du plomb y a été trouvé en grande quantité; d'autres éléments (Na, Ba, Al, Mg, Mn, Ca, Cu, Fe) très dilués ont été également identifiés.

La recherche des ions  $\text{K}^+$  et  $\text{Na}^+$  a été faite au photomètre de flamme BECKMANN sur l'eau de lavage du charbon. Le dosage a montré que le charbon contenait 0,15 % d'ion  $\text{K}^+$  et 0,01 % de  $\text{Na}^+$  passés en solution au cours du lavage.

*2° Sur les fumées d'iodure d'argent produites par la combustion de charbons imprégnés :*

La fumée a été recueillie et accumulée sur une lame de verre placée à quelques centimètres du générateur, puis collectée et examinée à l'aide d'un spectrophotomètre. L'analyse a montré que les fumées contenaient une grande quantité de sel de plomb; les autres éléments contenus dans le charbon se retrouvent dans la fumée mais en faible proportion.

Des spectres de diffraction de rayons X ont été obtenus à partir de fumées recueillies suivant la même technique. Ces spectres ont été réalisés à l'aide d'un cristallo-bloc CGR utilisé en monochromateur (raie  $\text{K}\alpha$  du cuivre) avec une chambre SEEMAN-BOHLIN travaillant en transmission.

La fumée de l'iodure d'argent était maintenue entre deux feuilles d'aluminium.

Les distances des raies ont été, faute de microphotomètre, mesurées directement à l'aide d'une règle graduée au 1/5 mm.

L'étude des distances réticulaires déduites des diagrammes montre que, outre les raies caractéristiques de l'iodure d'argent <sup>(1)</sup>, un grand nombre de raies sont apparentes. Parmi celles-ci, les raies de l'iodure de potassium ont pu être facilement identifiées; par contre seule la raie principale de l'iodure de plomb est visible. Les autres raies n'ont pu être identifiées avec certitude, elles doivent correspondre à un mélange de composés provenant de la sublimation des impuretés sous forme d'iodure et de leurs combinaisons entre eux ou avec l'iodure d'argent. Ainsi pour le système iodure d'argent et iodure de plomb, TUBANDT et EGGERT (1920) ont signalé l'existence d'une combinaison  $\text{I}^2\text{Pb}$ , 4  $\text{I Ag}$  solidifiable à 395 °C. On conçoit que l'importance de ces impuretés est loin d'être négligeable, car la proportion de l'iodure d'argent dans le charbon est elle-même petite (2 à 5 %).

---

(1) Seules les raies de la variété cubique  $\beta$  de l'iodure d'argent ont été nettement identifiées.

| I <sup>2</sup> Pb | IK         | IAg<br>hexagonal | IAg<br>cubique | Fumée<br>d'iode<br>d'argent<br>(cristaux sublimés) | fumée<br>d'iode<br>d'argent<br>(charbon imprégné)<br>après condensation<br>+ évaporation de<br>vapeur d'eau | Fumée<br>fraîche<br>d'iode<br>d'argent<br>(charbon imprégné) |
|-------------------|------------|------------------|----------------|----------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------|
|                   |            |                  |                |                                                    | 9,4                                                                                                         | 8,6                                                          |
| 7.0 (13)          |            |                  |                |                                                    | 8,6                                                                                                         | 7,1                                                          |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             | 6,5                                                          |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             |                                                              |
| 3.95 (2)          | 4.08 (42)  | 3.93 (75)        |                | 3.98                                               | 4.08                                                                                                        | 4.19                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             | 3.93                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             | 3.74                                                         |
|                   |            |                  | 3.74 (100)     | 3.74                                               | 3.74                                                                                                        | 3.74                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             | 3.57                                                         |
| 3.43 (100)        | 3.53 (100) | 3.72 (62)        |                | 3.53                                               | 3.53                                                                                                        | 3.53                                                         |
|                   |            | 3.50 (52)        |                | 3.50                                               | 3.53                                                                                                        | 3.43                                                         |
|                   |            |                  |                | 3.34                                               | 3.47                                                                                                        | 3.18                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    | 3.18                                                                                                        | 3.34                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    | 3.09                                                                                                        |                                                              |
|                   |            |                  |                |                                                    | 2.87                                                                                                        | 2.87                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             |                                                              |
|                   |            | 2.72 (25)        |                | 2.72                                               | 2.83                                                                                                        | 2.83                                                         |
| 2.52 (40)         |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             |                                                              |
|                   | 2.50 (70)  |                  |                |                                                    | 2.50                                                                                                        | 2.50                                                         |
|                   |            |                  |                |                                                    |                                                                                                             |                                                              |
|                   |            |                  |                |                                                    | 2.47                                                                                                        |                                                              |
|                   |            |                  |                |                                                    | 2.36                                                                                                        |                                                              |
| 2.27 (27)         |            | 2.29 (100)       | 2.29 (75)      | 2.29                                               |                                                                                                             | 2.29                                                         |

|          |          |          |      |      |      |
|----------|----------|----------|------|------|------|
| 2,15(7)  | 2,13(29) | 2,11(62) | 2,19 | 2,29 | 4,42 |
|          | 2,04(27) |          | 2,11 | 2,13 | 2,20 |
| 2,0(11)  |          |          |      | 2,04 | 2,09 |
| 1,90(13) |          | 1,96(60) | 1,98 | 1,95 | 1,95 |
|          |          | 1,92(10) | 1,95 | 1,92 | 1,92 |
|          |          |          |      | 1,88 | 1,88 |
| 1,71(8)  | 1,77(15) | 1,75(7)  |      | 1,77 |      |
|          |          |          |      | 1,75 |      |
| 1,63(5)  | 1,62(7)  |          | 1,62 | 1,62 |      |
|          | 1,58(24) | 1,55(17) |      | 1,58 |      |
| 1,50(3)  |          | 1,51(5)  |      |      |      |
| 1,45(8)  | 1,44(14) | 1,47(5)  | 1,49 | 1,49 |      |
|          |          |          | 1,48 | 1,44 |      |
| 1,38(8)  |          | 1,40(12) |      |      |      |
| 1,37(8)  | 1,36(3)  | 1,37(3)  |      | 1,36 |      |
| 1,31(4)  |          | 1,33(10) | 1,32 | 1,32 |      |
| 1,29(1)  |          | 1,29(17) |      |      |      |
| 1,26(3)  | 1,25(2)  | 1,25(7)  | 1,25 | 1,25 |      |
|          |          |          |      | 1,23 |      |
|          | 1,19(3)  | 1,20(5)  |      |      |      |
|          | 1,18(5)  | 1,17(3)  |      |      |      |
| 1,14(3)  |          |          | 1,15 |      |      |
|          |          |          |      |      |      |

Reproduction des diagrammes obtenus par diffraction des rayons X sur des fumées d'iode d'argent.

Les spectres de référence de l'iode de plomb, l'iode de potassium et l'iode d'argent hexagonal et cubique sont donnés, avec, entre parenthèses, l'intensité relative des raies.

De plus, la comparaison de diagrammes obtenus à partir de fumées fraîches maintenues à l'abri de l'humidité (par une protection de paraffine au cours de la diffraction) et de ceux produits par des fumées ayant subi une condensation prolongée de vapeur d'eau à température positive montre que les deux spectres ne sont pas absolument identiques : si le plus grand nombre de raies se retrouvent dans les deux diagrammes, par contre certaines ont disparu et d'autres sont apparues après le traitement; l'intensité relative de quelques raies paraît avoir été modifiée. La complexité du mélange auquel on a affaire nous a empêché d'interpréter avec certitude ces modifications. Il est très probable, comme nous l'avons proposé au chapitre précédent, qu'il y a eu solubilisation et recristallisation d'une partie des sels. En particulier, grâce à la présence de l'iodure de potassium, les iodures d'argent et de plomb ont pu se dissoudre au cours de la condensation de vapeur d'eau, puis se recristalliser sous forme d'un mélange complexe de ces sels et des cristaux mixtes qu'ils peuvent donner entre eux (l'existence chimique de la plupart d'entre eux est d'ailleurs assez peu sûre). L'activité du noyau au cours d'une action ultérieure dépendra du nouvel état de sa surface. Il n'est pas impossible que des centres actifs correspondant à des cristaux purs de l'iodure d'argent puissent exister, mais cette probabilité est assez faible si l'on songe à l'importance des éléments étrangers qui ont pu se déposer à sa surface. Remarquons que l'iodure de plomb a été reconnu actif à partir de  $-5,2$  à  $-6,5$  °C d'après PRUPPACHER (1955), de  $-4$  à  $-9$  °C d'après FACY (1952). SCHAEFER (1954) signale que l'iodure de plomb et l'iodure d'argent agissent également comme noyaux de sublimation pour fixer directement la vapeur à l'état solide, mais que si les noyaux agissent comme agent de congélation, l'iodure de plomb ne provoque plus aucun effet appréciable tant que la température ne s'abaisse pas jusqu'aux environs de  $-20$  °C. Il attribue la moindre efficacité de l'iodure de plomb au fait que ce sel est plus soluble dans l'eau que l'iodure d'argent. Si l'on admet la validité de cette remarque, la présence de l'iodure de plomb peut suffire à expliquer l'inactivité du noyau; la présence de l'iodure de potassium <sup>(1)</sup>, favorisant la solubilisation des iodures de plomb et d'argent ne fait que renforcer cette hypothèse.

Le dégagement des centres actifs nécessite la redissolution du dépôt au cours d'une nouvelle condensation, mais la solution qui en résultera sera probablement trop concentrée pour permettre une action glaçogène normale.

En ce qui concerne la désactivation par sublimation directe de glace sur le noyau, SOULAGE a observé que la sublimation se terminait en général par l'évaporation d'une goutte résultant de la fusion des derniers résidus

---

(1) L'iodure de potassium ne présenterait par lui-même une activité glaçogène qu'à partir de  $-13$  à  $-16$  °C d'après HOSLER (1951).

de glace en présence du sel contenu dans le cristal ou dans le noyau. De son côté, KOEHLER (1922) a montré théoriquement qu'une gouttelette devait se former en fin de sublimation du cristal. Nous n'avons pu mettre en évidence ce phénomène dans nos expériences de sublimation de cristaux; il est vrai que la très petite taille des noyaux (quelques  $1/100 \mu$ ) ne permettait pas une observation efficace de la phase terminale de la sublimation; notons simplement que si cette fusion a lieu, elle doit être de très courte durée car l'évaporation finale de la glace est extrêmement rapide et il paraît difficile d'admettre que ce temps soit suffisant pour une dissolution. Il apparaît donc que la désactivation à la suite d'une sublimation de glace est assez mal expliquée par le processus de dissolution-recristallisation.

Par contre la perte spontanée d'activité des noyaux au cours du temps peut s'expliquer par l'action de la vapeur d'eau atmosphérique, action que nous avons contrôlée par ailleurs sur des fumées recueillies sur lame de verre.

Rappelons également que l'apparition de la glace au sein d'un brouillard surfondu inséminé à l'aide de fumées d'iodure d'argent peut ne pas être immédiate, la vitesse de nucléation dépendant essentiellement de la température. Dans ces conditions, l'eau, au contact des noyaux, peut avoir une action dissolvante avant que la glace ait eu le temps de se former. En d'autres termes, le processus de désactivation par action dissolvante de l'eau peut aussi bien avoir lieu à une température supérieure au seuil d'action qu'à une température inférieure à condition, dans ce dernier cas, que la vitesse de nucléation soit relativement faible (c'est-à-dire la température pas trop basse).

### 3° Sur des cristaux d'iodure d'argent commercial :

Les cas de désactivation ayant été constatés, non seulement pour les fumées en provenance de charbons imprégnés mais également pour des particules produites par sublimation de cristaux d'iodure d'argent commercial, nous avons voulu nous assurer si ce dernier produit ne contenait pas des éléments solubles qui pourraient être rendus responsables de l'inactivité des noyaux. Dans ce but, la poudre d'iodure d'argent a été lavée par de l'eau bidistillée, puis l'eau de lavage analysée au photomètre de flamme en vue du dosage des ions  $K^+$  et  $Na^+$ . Deux échantillons de provenance différente ont donné les résultats suivants :

*Premier échantillon* : 3 mg de  $Na^+$  et 25,5 mg de  $K^+$  pour 100 g d'iodure d'argent.

*Deuxième échantillon* : 2,2 mg de  $Na^+$  et 72,6 mg de  $K^+$  pour 100 g d'iodure d'argent.

En supposant que les sels de sodium et de potassium soient uniquement composés d'iodures, on arrive aux proportions suivantes :

*Premier échantillon* : 0,02 % d'iodure de sodium et 0,1 % d'iodure de potassium dans l'iodure d'argent.

*Deuxième échantillon* : 0,014 % d'iodure de sodium, 0,3 % d'iodure de potassium dans l'iodure d'argent.

L'analyse spectrophotométrique n'a pas révélé de quantités appréciables de matières étrangères.

Les diagrammes de diffraction de rayons X obtenus à partir des fumées produites par sublimation directe des cristaux correspondent au spectre de l'iodure d'argent à peu près pur; seules trois ou quatre raies de faible intensité sont étrangères à l'iodure d'argent; leur petit nombre ne nous a pas permis de les identifier (les raies de l'iodure de potassium ne sont pas perceptibles). De plus, la comparaison des diagrammes de fumées fraîches et de fumées ayant subi une condensation de vapeur d'eau suivie d'évaporation montre qu'ils sont rigoureusement identiques.

L'étude des spectres montre que l'iodure d'argent est constitué par un mélange de ses deux variétés hexagonale  $\gamma$  ( $a = 4,58$ ) et cubique  $\beta$  ( $a = 6,47$ ) stables à la température ordinaire, avec prédominance de la forme cubique. Dans le but de faire varier la vitesse de refroidissement, les fumées ont été recueillies à des distances variables du générateur (de 1 à 20 cm); les spectres de rayons X correspondants ne présentent aucune différence sensible. J.-J. TRILLAT et A. LALŒUF (1948) ont également observé qu'un dépôt épais de fumées d'iodure d'argent (et c'était le cas dans nos expériences) était principalement formé de la forme cubique. J.-E. MANSON (1955) a fait remarquer que la composition du mélange dépendait de la température de formation des fumées, la proportion d'iodure d'argent hexagonal augmentant quand la température croît. Le problème de la distinction des deux variétés (qui est assez délicat étant donnée la proche ressemblance des deux spectres) n'est pas fondamental pour nous, puisque, comme l'a montré MONTMORY (1956), les deux formes sont également actives, toutes deux grâce à la symétrie hexagonale qu'elles présentent, cette symétrie étant due au plan (111) pour la variété cubique et au plan (0001) pour la variété hexagonale. Revenons à l'interprétation des désactivations : nous avons vu que les analyses n'ont décelé que des quantités très faibles de matière étrangère dans l'iodure d'argent; ces substances peuvent-elles, malgré leur peu d'importance, être tenues pour responsables de la désactivation des noyaux? Il semble difficile d'admettre qu'une proportion aussi infime de matière soluble (quelques millièmes de sels alcalins) puisse conduire à l'inactivité du noyau par un processus de dissolution-recristallisation (de l'iodure d'argent, de l'iodure de potassium et des sels doubles qu'ils peuvent former) comme nous l'avons envisagé à propos des fumées émises par le charbon imprégné.

Nous avons voulu vérifier si les mêmes phénomènes de désactivation pouvaient être observés pour de l'iodure exempt de substance soluble.

Dans ce but, la poudre d'iodure d'argent a été lavée un grand nombre de fois à l'eau bidistillée (déclarée sans sel alcalin par contrôle au photomètre de flamme) de façon à épuiser la poudre de toutes ses impuretés solubles. L'expérience a montré que les cristaux d'iodure d'argent ainsi lavés et séchés pouvaient être désactivés de la même façon après avoir été soumis à une condensation-évaporation préalable de vapeur d'eau ou après une glaciation-sublimation. Aucune différence sensible n'a pu être constatée entre le comportement de l'iodure brut et de l'iodure lavé.

En résumé, si la présence d'éléments étrangers peut expliquer l'inaction des fumées émises par le charbon imprégné, il semble que pour l'iodure d'argent pur se présentant aussi bien sous forme de particules de fumée, que sous forme de grains de quelques dizaines de microns, la désactivation ne soit pas imputable à des substances contenues primitivement dans l'iodure d'argent.

Nous sommes ainsi conduits à envisager une autre possibilité.

**Deuxième hypothèse : l'eau (ou la glace) dépose au cours de l'évaporation (ou de la sublimation) des substances étrangères sur le noyau.**

Rappelons tout d'abord que l'observation des cristaux d'iodure d'argent déposés sur lame de verre a montré qu'après une condensation de vapeur d'eau sur la lame, les grains d'iodure d'argent désactivés semblaient être devenus hygroscopiques; la goutte qui se condense sur un grain est généralement entourée d'un cerne de petites gouttelettes, de plus le contour du noyau se déforme au contact du liquide qui l'enrobe. Ces observations ont été faites aussi bien avec des cristaux bruts d'iodure d'argent que pour des grains préalablement lavés. On peut donc en conclure que cette hygroscopicité qui n'existait pas pour des grains frais, a été acquise à la suite de la première condensation de vapeur d'eau; celle-ci a dû déposer au cours du séchage, des substances étrangères sur (ou autour) du noyau.

Si l'on condense de la vapeur d'eau atmosphérique sur une lame de verre parfaitement propre en la refroidissant dans l'air ambiant, on constate que le dépôt de buée est constitué par une multitude de petites gouttelettes de taille homogène (*fig. 32 a*), réparties uniformément sur la surface et qui, en grossissant et en se réunissant finissent par former de très grosses gouttes. Si après avoir laissé l'eau s'évaporer, on recommence l'opération, la condensation ne se fait plus cette fois d'une manière homogène; si le refroidissement de la lame est assez lent, les condensations apparaissent d'abord sur un certain nombre d'emplacements disséminés sur la surface (*fig. 32 b*).

L'aspect de ces premières condensations est analogue à celui des condensations qui entouraient les cristaux d'iodure d'argent désactivés. Si l'opéra-

tion est répétée plusieurs fois de suite, les condensations apparaissent toujours sur les mêmes zones privilégiées. Celles-ci correspondent très probablement à des lieux où l'eau a laissé des résidus hygroscopiques en s'évaporant. Dans cette expérience, la très faible quantité de vapeur d'eau atmosphérique condensée laisse un dépôt trop ténu pour être visible par les moyens d'observation microscopique ordinaire, mais il suffit d'accumuler une masse suffisante de vapeur d'eau pour les mettre en évidence. Par exemple, si l'on place une lame de verre parfaitement propre, au centre du conservateur de glace de 90 l dans lequel un brouillard surfondu est entretenu à l'aide d'un générateur de vapeur d'eau, la lame ne tarde pas à se couvrir de givre. On laisse la glace s'amonceler, puis on retire la lame de la chambre froide pour faire fondre la glace et évaporer complètement son eau de fusion par chauffage ménagé. L'observation microscopique montre que la lame est couverte de résidus dont une grande partie est cristallisée sous forme cubique (*fig. 35 a*).

Ces cristaux sont hygroscopiques et se dissolvent rapidement dans l'humidité atmosphérique (pour un degré hygrométrique d'environ 80 %) (*fig. 35 b*).

DESSENS (1952), étudiant les noyaux de condensation atmosphérique, a montré que ceux-ci étaient principalement constitués de chlorure de sodium. Il est probable que les cristaux cubiques que nous avons observés en soient également. L'importance des sels déposés par l'eau atmosphérique peut s'expliquer si l'on considère que Rabat, lieu où ces expériences ont été réalisées, est sous une influence nettement océanique et qu'une brume quasi permanente baigne la bande côtière marocaine; DESSENS (1946) a montré que les gouttelettes de brume contenaient du sel qui apparaîtrait par dessiccation sous forme de cristaux cubiques (pouvant avoir jusqu'à  $10\text{ }\mu$  de côté).

Nous avons également essayé de mettre en évidence les résidus laissés par l'évaporation de gouttelettes maintenues par des fils d'araignée tendus sur le petit support utilisé dans nos premières expériences (*fig. 1 bis*). Les fils ont d'abord été placés dans notre petite chambre froide pour être soumis à des insufflations de vapeur d'eau à la bouche; la captation des gouttelettes (d'une dizaine de microns de diamètre) est contrôlée au microscope. Les résidus laissés par les gouttelettes après leur évaporation ne sont pas visibles par l'observation habituelle, mais l'examen des fils au microscope électronique décèle des petites particules de dimensions inférieures à  $0,1\text{ }\mu$ . Leur dénombrement donne une moyenne de 325 résidus par millimètre de fil. D'autres supports ont été placés pendant une durée de 5 à 30 mn dans le brouillard entretenu dans le conservateur de glace. L'observation des fils au microscope électronique décèle des dépôts assez importants (quelques microns) aux points de croisement des fils, là où de grosses gouttes ont dû s'évaporer; de plus de très petits résidus (600 par millimètre) sont également

visibles le long des fils. La taille de ces particules correspond bien à ceux des noyaux de condensation atmosphériques les plus nombreux. Les auteurs s'accordent pour admettre que le nombre de particules atmosphériques est de l'ordre de quelques centaines par centimètre cube (DESSENS, 1947; MOORE, 1952).

Il est possible de rendre mieux visibles les résidus d'évaporation en accumulant sur les fils une grande quantité de glace; pour cela on laisse les fils dans le brouillard assez longtemps pour qu'ils se recouvrent d'une masse importante de givre. Après fusion et évaporation de la glace, des résidus sont visibles sur les fils (*fig. 39*). De même l'évaporation de très grosses gouttes (de 0,5 à 1 mm de diamètre) nous a permis de mettre en évidence un résidu au point de croisement des fils où se produit la phase terminale de l'évaporation (*fig. 32 et 33*).

L'ensemble de ces expériences montre donc que la vapeur d'eau qui s'est condensée sous forme liquide ou solide laisse après son évaporation des résidus décelables. On peut penser que ce sont ces dépôts qui, venant masquer les centres actifs, sont responsables de la désactivation des noyaux.

Comme l'a montré FACY (1955), la capture des particules atmosphériques se ferait par un mécanisme de cinétique moléculaire. Au cours de la condensation de vapeur d'eau, les particules seraient soumises à un bombardement différentiel de la part des molécules d'eau suivant une direction privilégiée qui est celle empruntée par le transfert de la vapeur; ainsi il y aurait un véritable afflux de particules atmosphériques sur la goutte en voie de condensation. La réalité d'un tel processus a été mise en évidence expérimentalement par FACY qui a visualisé le phénomène en introduisant dans l'atmosphère un aérosol inerte de particules submicroscopiques rendues visibles en les éclairant latéralement sur fond noir. L'observation permet de suivre la trajectoire des particules témoins sous l'action des chocs qu'elles reçoivent de la part des molécules de vapeur d'eau; le transfert est ainsi matérialisé par un déplacement continu vers la goutte qui se condense, mouvement qui se superpose au mouvement brownien habituel.

De même dans le cas de la sublimation inverse de vapeur d'eau sur des cristaux de glace, le processus de capture serait identique et dans des proportions encore accrues si l'on songe que le gradient de tension de vapeur est, dans ce cas, plus important.

Remarquons que, dans le cas de fumées libres, il n'est pas nécessaire que la condensation de vapeur d'eau se fasse directement sur les noyaux glaçogènes pour que leur pollution par un tel processus soit efficace. En effet, si la condensation a lieu sur les noyaux de condensation atmosphériques, les noyaux glaçogènes seront captés en même temps que les particules atmosphériques par les gouttes en voie de condensation. Celles-ci déposeront au cours de leur évaporation un agglomérat formé de toutes les particules actives et inactives fixées dans la phase condensation.

De même, dans nos expériences de condensation de vapeur d'eau sur lame de verre, les particules atmosphériques ont pu être captées, soit par les gouttes en voie de condensation au contact direct du support, soit par des gouttelettes préalablement condensées dans l'air au voisinage immédiat de la lame et qui y sont tombées ensuite. Il n'est pas possible de savoir avec certitude laquelle de ces deux alternatives correspond à la réalité, mais dans les deux cas, le processus de capture de particules atmosphériques est possible.

Nous avons montré que les résidus étaient en partie solubles dans l'eau et probablement constitués en grande partie par du sel marin. Si l'on admet que le dépôt n'est constitué que de chlorure de sodium, celui-ci doit pouvoir se redissoudre au cours d'une condensation ultérieure et libérer les sites favorables à une action glaçogène. Comment peut-on expliquer alors l'inactivité du noyau?

Plusieurs hypothèses sont possibles.

a) La concentration de la solution salée qui enrobe le noyau est assez grande pour perturber l'action glaçogène. On peut admettre que la première action glaçogène s'est manifestée vis-à-vis d'une pellicule d'eau contenant très peu de sel mais que la croissance de la glace amasse une quantité de sel qui se groupera autour du noyau pendant l'évaporation. Ainsi au cours d'une condensation ultérieure, le noyau se trouvera en présence d'une solution beaucoup plus concentrée.

b) Tout le chlorure de sodium ne repasse pas en solution, des ions restant adsorbés à la surface du noyau.

On peut se demander en effet si les ions  $\text{Cl}^-$  de la solution saline ne peuvent pas être et rester adsorbés par les ions  $\text{Ag}^+$  de la couche superficielle du réseau cristallin de l'iodure d'argent. Cette éventualité est possible si l'on en croit la règle établie par PANETH (1928) et FAJANS (1931) (cf. WEISER, 1950) précisant que les ions seront d'autant plus fortement adsorbés par un réseau composé d'ions que ceux-ci forment un composé difficilement soluble ou faiblement dissocié avec l'ion de charge opposée appartenant au réseau. L'association chlore-argent satisfait à la première condition.

FAJANS considère que l'ion adsorbé devient ainsi partie intégrante du réseau cristallin adsorbant. De plus, un ion serait d'autant plus facilement adsorbé que son diamètre est plus petit; l'ion  $\text{Cl}^-$  a donc de fortes chances pour être et rester adsorbé à la surface du noyau et venir ainsi perturber le champ de forces créé par la couche superficielle du réseau qui orientait les molécules d'eau suivant un modèle préfigurant le cristal de glace.

Si l'on admet ce processus d'adsorption, on pourrait s'attendre à trouver les raies de chlorure d'argent dans les spectres obtenus par diffraction des rayons X. Ces raies sont inexistantes dans nos spectres mais il ne faut pas

s'en étonner si l'on songe que la technique opératoire n'a mis en contact avec la vapeur d'eau que la couche superficielle d'une quantité assez importante de fumée d'iodure d'argent recueillie sur la lame de verre; ainsi la proportion de chlorure d'argent ne peut être qu'extrêmement faible par rapport à la masse totale d'iodure d'argent qui a été examinée aux rayons X et il n'est pas surprenant qu'elle ne soit pas décelée.

c) Les résidus déposés sur le noyau au cours de l'évaporation de l'eau sont des substances mixtes contenant à côté d'un sel soluble, une matière insoluble.

Cette hypothèse est en accord avec les déterminations effectuées par JUNGE (1952) qui a montré le caractère mixte des noyaux de condensation de l'air. Dans ces conditions, seule la partie insoluble, polluant les centres actifs du noyau, serait responsable de son inactivité.

Quelle que soit la nature exacte du processus de désactivation, l'origine atmosphérique des substances étrangères qui viennent perturber l'action du noyau explique le caractère inconstant de la désactivation. L'efficacité de celle-ci dépendrait de la pollution atmosphérique au moment de l'expérience. De plus, on conçoit que, plus la dimension du noyau est petite, plus il sera facilement désactivable par le dépôt de matière étrangère à sa surface. C'est bien ce que nos expériences ont montré quand nous avons étudié l'action glaçogène de cristaux d'iodure d'argent déposés sur lame de verre. Par contre, si nous n'avons pas constaté de différence sensible entre des noyaux provenant de fumées produites dans des conditions de ventilation très différentes, cela peut être dû au fait que la dimension des noyaux (quelques centaines d'angström) était restée petite devant celle des particules atmosphériques venues les polluer et que, dans ces conditions, les variations de taille des noyaux n'aient pas eu d'effet mesurable sur leur facilité de désactivation. Ajoutons que ces résultats semblent devoir écarter l'éventualité d'un effet désactivant par voie photochimique, puisque dans ce cas, la sensibilité à cette action serait plus grande pour les gros noyaux.

En outre, la perte d'activité au cours du temps des très petits noyaux qui constituent la fumée d'iodure d'argent captée par des fils d'araignée, s'expliquerait par leur lente pollution par les particules atmosphériques et peut-être aussi par les molécules d'air qui resteraient adsorbées à leur surface.

### **Troisième hypothèse : les centres actifs du noyau seraient altérés par suite de leur contact avec l'eau.**

Le séjour prolongé de l'iodure d'argent dans l'eau pure peut-il altérer sa surface et lui faire perdre son pouvoir glaçogène? Il ne semble pas, en tous cas, qu'un contact préalable avec l'eau perturbe le pouvoir adsorbant de l'iodure d'argent vis-à-vis des molécules d'eau. BIRSTEIN (1954) ainsi

que COULTER et CANDELA (1952) qui ont mesuré l'adsorption de vapeur d'eau par l'iodure d'argent, n'ont pas trouvé d'hystérésis dans ce phénomène.

Remarquons que les deux derniers auteurs ont trouvé des courbes isothermes d'adsorption possédant une particularité curieuse : elles présentent un brusque accroissement d'adsorption pour une valeur de  $P/P_0$  voisine de  $1/2$ . Ils attribuent cette anomalie (que n'a pas rencontrée BIRSTEIN) à la présence d'une impureté à la surface de l'iodure d'argent capable de former un hydrate chimique; ils sont arrivés à cette conclusion en remarquant que la quantité d'eau adsorbée dans cette phase transitoire ne dépendait pratiquement pas de la température.

On peut se demander s'il ne s'agit pas également d'une adsorption des ions  $H^+$  et  $OH^-$  de l'eau formant une double couche ionisée à la surface de l'iodure d'argent. Il est possible alors, qu'après une évaporation, ces ions restent adsorbés par le noyau. Or, si l'on admet que l'action glaçogène résulte d'une adsorption *orientée de molécules* d'eau, les ions  $H^+$  et  $OH^-$  fixés sur le noyau pourraient perturber l'action orientante due aux ions  $Ag^+$  et  $I^-$  constituant le réseau cristallin de l'adsorbant, le pouvoir adsorbant n'étant pas forcément modifié pour autant.

Une autre explication de la destruction des centres actifs serait leur dissolution dans l'eau de condensation et leur recristallisation sous une forme inactive au cours du séchage. Cette éventualité peut à la rigueur être valable pour les très petits noyaux des fumées d'iodure d'argent. Nous avons déjà fait remarquer qu'une particule de 100 Å de diamètre pouvait être complètement dissoute dans une goutte de 10  $\mu$ .

Pour les cristaux plus gros, il faudrait admettre une solubilisation privilégiée des centres actifs. Ceux-ci pourraient par exemple être localisés aux points de courbure maximum dont la solubilité serait plus grande. Ainsi, le séjour prolongé d'un noyau dans l'eau aurait pour effet de supprimer peu à peu, par dissolution, les arêtes et les pointes qui constituaient les centres actifs.

En ce qui concerne la désactivation des noyaux après une ou plusieurs congélations, il se peut, comme l'a montré Mme ROULLEAU (1957), que le phénomène de congélation induite suffise, à lui seul, à faire perdre au noyau son activité glaçogène. En effet, ses observations portant sur des gouttes d'eau maintenues à l'abri de l'air par une couche d'huile de silicone montrent qu'après chaque cycle de congélation-fusion, la température de congélation (qui serait celle de la température d'action des noyaux contenus dans la goutte) décroît progressivement. Aucune interprétation n'est d'ailleurs proposée pour expliquer le mécanisme de détérioration des noyaux.

Notons que l'effet désactivant dû à la seule congélation paraît moindre que celui que nous avons observé dans nos expériences de congélation-fusion-évaporation et de congélation-sublimation dans lesquelles l'eau enrobant le

noyau avait pu, au cours de la phase évaporation (ou sublimation) déposer sur le noyau les particules atmosphériques captées au cours de la phase condensation ou sublimation inverse. Il n'est pas exclu, d'ailleurs, qu'à ce dernier mode de pollution vienne s'ajouter l'altération du noyau par la seule congélation.

Si, comme le propose Mme ROULLEAU, la décroissance d'activité des noyaux peut jouer un rôle notable dans le mécanisme de la grêle (en permettant à l'eau contenue dans un nuage de se répartir sur un plus petit nombre de particules), il semble alors que la désactivation par suite d'une condensation suivie d'évaporation sur les noyaux soit, dans un nuage en perpétuelle évolution, plus probable et plus efficace que celle due aux congélations et fusions successives, ce dernier processus nécessitant un mouvement alternatif des granules de glace.

## CONCLUSION

Les premières expériences qui ont mis en évidence l'inactivité des noyaux d'iodure d'argent en présence de gouttes surfondues, nous a conduit à envisager l'hypothèse d'une désactivation due à une condensation préalable de vapeur d'eau sur le noyau. Nous avons entrepris l'étude systématique des effets désactivants de divers traitements et ceci à l'aide de techniques très différentes : observation individuelle de gouttes au contact de l'iodure, étude de noyaux maintenus par des fils d'araignée, de fumées libres, de cristaux déposés sur lame. Les expériences ont montré qu'une particule d'iodure d'argent qui a été le siège, soit d'une condensation suivie d'évaporation, soit de formation de glace suivie de sublimation ou d'évaporation de son eau de fusion, pouvait être rendue inactive. La perte du pouvoir glaçogène ne présente pas un caractère systématique et il n'est pas possible de prévoir avec certitude si un noyau pris individuellement sera ou non désactivé à la suite d'un de ces traitements. Néanmoins, le dénombrement de noyaux actifs portant sur un grand nombre de particules nous a permis de préciser le taux de désactivation pour un ensemble de noyaux, taux d'ailleurs variable mais pouvant atteindre 100 %.

Il ne semble pas que les impuretés contenues initialement dans le noyau puissent, à elles seules, expliquer le phénomène, puisque des cristaux d'iodure d'argent lavés et des particules de fumées obtenues par sublimation directe de cristaux d'iodure ont été désactivés aussi bien que des fumées émises par des charbons imprégnés. Ceci n'exclue pas, pour ces dernières, la possibilité d'une désactivation due à la présence d'iodures de plomb et de potassium.

La cause la plus probable des phénomènes de désactivation paraît due à la présence de substances étrangères dans l'eau de condensation ou dans la glace induites sur le noyau. Ces éléments, provenant de la pollution atmosphérique et captés au cours de la condensation de gouttelettes d'eau ou de la sublimation inverse de la glace, se déposeraient sur le noyau au cours de l'évaporation de l'eau ou de la sublimation de la glace. Ils seraient constitués, soit de matière en grande partie soluble et en quantité suffisante pour perturber la congélation de l'eau, soit de matières mixtes dont la fraction insoluble resterait déposée à la surface du noyau. Ce processus expliquerait l'inconstance des phénomènes puisque ceux-ci dépendraient essentiellement de la pollution atmosphérique au moment de l'expérience

et de l'importance du processus de capture des particules atmosphériques. Lorsqu'un noyau retrouve une activité après avoir été désactivé antérieurement, le phénomène serait dû à un déplacement fortuit des matières insolubles qui masquaient les centres actifs. Le fait que d'autres physiciens ont observé des cas de désactivation sur des éléments glaçogènes autres que l'iodure d'argent, indique que le phénomène n'est pas spécifique de ce composé; ceci accrédite l'idée d'une altération du noyau due à une cause externe.

Enfin, la diminution du pouvoir glaçogène au cours du temps, bien que très variable, a pu être mise en évidence. Ce vieillissement peut provenir également d'une pollution des noyaux par les particules atmosphériques. Leur plus ou moins grande vitesse de pollution serait fonction de l'état d'électrisation des particules atmosphériques et des noyaux, en particulier au moment même de la génération des fumées, ce qui expliquerait les cas de vieillissement précoce observés.

Ajoutons que l'effet désactivant de la lumière solaire, action qui a été confirmée par nos expériences, peut également avoir une influence non négligeable.

Ainsi, l'efficacité d'une insémination d'un nuage en vue d'une précipitation à l'aide d'un générateur de fumée au sol nous paraît dépendre, non seulement de la diffusion des particules (SERRA, 1954), mais aussi de la vie des noyaux depuis leur génération. En particulier, si la base du nuage que les noyaux atteignent est à une température supérieure à leur température normale d'action, les gouttelettes qui composent le nuage et qui sont en perpétuelle évolution, peuvent capter les noyaux ainsi que les autres particules atmosphériques au cours de leur phase de condensation. Si la gouttelette s'évapore avant d'entrer en contact avec la partie froide du nuage, le noyau enrichi des particules étrangères qui ont été captées en même temps que lui aura de fortes chances pour être devenu inactif. DESSENS (1954 *b*) a remarqué que, chaque fois qu'une action certaine de l'iodure d'argent avait été observée, les noyaux avaient été introduits directement dans le nuage surfondu. C'est ainsi que lorsque la précipitation d'un petit cumulus inséminé à partir du sol a été manifeste (cliché de la page 58 du *Bulletin de l'Observatoire du Puy-de-Dôme*, n° 2, 1953), la base du cumulus était située au-dessus de l'isotherme 0 °C. Cette constatation était peut-être fortuite et il serait intéressant de vérifier systématiquement l'efficacité des inséminations en fonction de la température à laquelle les noyaux entrent en contact avec le nuage.

On comprend l'importance, en météorologie expérimentale, des processus de désactivation que nous avons mis en évidence. Ceux-ci peuvent se produire naturellement au cours d'inséminations de nuages réels et être responsables, tout au moins en partie, de certains cas d'insuccès enregistrés dans les tentatives de pluie provoquée et qui sont restés jusqu'ici inexplicés.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BAYARDELLE (Mlle). · 1954 *C. R. Ac. Sc.*, **239**, p. 988.
- BERGERON. · 1928 *Geof. Publ.*, **5**, p. 29.
- BERGERON. — 1935 P. V. Congrès de l'U.G.G.I., à Lisbonne, 1933, pp. 156-178.
- BIDAULT. — 1953 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **4**, pp. 91-96.
- BIGG. · 1953 *Quart. J. of R. Met. Soc.*, **232**, p. 510-518.
- BIRSTEIN · 1952 *Bull. Am. Met. Soc.*, **32**, **4**, pp. 132-135.
- BIRSTEIN. · 1954 *Geoph. Research Papers*, n° 32.
- BOLTON et QURESHI. 1954 *Bull. Am. Met. Soc.*, **35**, pp. 395-399.
- BREWER et PALMER. · 1951 *Proc. Phys. Soc. B.*, **64**, pp. 765-773.
- BRICARD. · 1953 *Physique des Nuages*, P.U.F.
- COULDER et CANDELA. · 1952 *Zeitschrift für Elek.*, **56**, 2, pp. 449-452.
- CWILONG. · 1947a *J. of Glaciology*, **1**, pp. 53-57.
- CWILONG. · 1947b *Proc. Roy. Soc. A.*, **190**, pp. 137.
- CWILONG. 1949 *Nature*, **4149**, pp. 727-728.
- DARMOIS. — 1943 *L'état liquide de la matière*, Albin Michel, Paris.
- DESSENS. — 1946 *Ann. Géoph.*, **2**, **4**, pp. 276.
- DESSENS. · 1947 *La Météorologie*, pp. 328.
- DESSENS. — 1952 *Ann. Géoph.*, **8**, **1**, pp. 21-31.
- DESSENS. · 1954a *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **4**, pp. 126-127.
- DESSENS. · 1954b *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **1**, pp. 23-24.
- DESSENS et FERT. — 1951 *C. R. Ac. Sc.*, **232**, pp. 606-608.
- DORSCH et HACKER. · 1950 *Quart. J. of R. Met. Soc.*, **232**, pp. 510-518.
- DOUCET. · 1946 *Note du Group. Rech. Aero*, **35**, pp. 1-31.
- FACY. · 1952 *J. Sc. Met. Nat. fr.*, **2**, **5**, p. 7.
- FACY. — 1955 *Archiv. für Met. Geoph. u. Biokl.*, pp. 229-236.
- FINDEISEN. · 1938 *Met. Zeit.*, **55**, p. 29.
- FOURNIER D'ALBE. — 1949 *Quart. J. R. Met. Soc.*, **75**, pp. 1-14.
- FRIEDEL. — 1926 *Leçons de cristallographie*. Berger-Levrault, p. 519.
- HEVERLY. · 1949 *Trans. Am. Geoph. Union*, **30**, pp. 205-210.
- HILL. 1908 *J. Am. Chem. Soc.*, **30**, pp. 68-74.
- HOSLER. 1951 *J. of Met.*, **8**, pp. 326-331.
- INN. · 1951 *Bull. Am. Met. Soc.*, **32**, **4**, pp. 132-135.
- JAFFRAY et MONTMORY. · 1956 *C. R. Ac. Sc.*, **13**, pp. 891-893.
- JUNGE. · 1952 *Ann. Meteorol., Beiheft*, pp. 1-55.
- KENNEDY. · 1916 *Pro. Roy. Irish Acad.*, **32 A**, pp. 58-74.
- KIVELOVITCH et ROULLEAU. 1951 *J. Sc. de la Met.*, **3**, **9**, pp. 1-8.
- KÖHLER. — 1922 *Geof. Publik*, **11**, n° 6.

- LAFARGUE. -- 1950 *Cent. Proc. Roy. Met. Soc.*, pp. 61-63.  
 MANSON. -- 1955 *J. of Appl. Phys.*, **26**, **4**, pp. 423-425.  
 MARUYAMA. --- 1955 *Papers in Met. Geophys.*, **6**, **1**, pp. 12-18.  
 MASON. --- 1950 *Quart. J. Roy. Met. Soc.*, **76**, pp. 59-74.  
 MASON. --- 1953 *Archiv. Met. Geoph. Biokl.*, Bd. 6, H1, pp. 1-52.  
 MONTMORY. --- 1956 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **4**, pp. 126-147.  
 MOORE. --- 1952 *Quart. J. R. Met. Soc.*, **78**, p. 596.  
 NOLAN. --- 1933 *Proc. Roy. Irish Acad.*, **41 A**, pp. 61-69.  
 NOLAN. --- 1941 *Proc. Roy. Irish Acad.*, **47 A**, pp. 25-38.  
 NOLAN et KUFFEL. --- 1955 *Geoficia pura e appl.*, **31**, pp. 97-106.  
 PICCA. --- 1954 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **2**, pp. 33-42.  
 PICCA. --- 1956 *C. R. Ac. Sc.*, **241**, pp. 489-492.  
 PRUPPACHER et SAENGER. --- 1955 *Z. A. M. P.*, **6**, p. 407.  
 RAU. --- 1944 *Schr. deutsch Akad. Luft. Berlin*, **8**, p. 65.  
 REYNOLDS, HUME, VONNEGUT et SCHAEFER. --- 1951 *Bull. Am. Met. Soc.*, **32**, **4**, pp. 132-135.  
 REYNOLDS, HUME et WHRITER. --- 1952 *Bull. Am. Met. Soc.*, **33**, **1**, pp. 26-31.  
 ROULLEAU (Mme). --- 1957 *Thèse* (Paris).  
 ROYER. --- 1928 *Bull. Soc. Franç. de Min.*, **51**, pp. 7-159.  
 SCHAEFER. --- 1946 *Science*, **104**, p. 457.  
 SCHAEFFER. --- 1954 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **1**, p. 3.  
 SERPOLAY. --- 1956 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **2**, p. 33.  
 SERRA. --- 1954 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **3**, pp. 65-76.  
 SOULAGE. --- 1953 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **4**, pp. 81-90.  
 SOULAGE. --- 1955a *C. R. Ac. Sc.*, **240**, pp. 2168-2170.  
 SOULAGE. --- 1955b *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **1**, pp. 1-8.  
 SOULAGE. --- 1956 *Thèse* (Paris), *Les noyaux de congélation de l'atmosphère*.  
 TOYE (Mlle). 1956 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **3**, pp. 71-77.  
 TRILLAT et LALCÈUF. --- 1948 *J. de Chim. Phys.*, **46**, pp. 168-173.  
 TUBAND et EGGERT. --- 1920 *Z. Anorg. Chim.*, **110**, p. 196.  
 VONNEGUT. --- 1947 *J. of Appl. Phys.*, **18**, **7**, pp. 593-595.  
 VONNEGUT. --- 1949 *Chem. Rev.*, **44**, pp. 277-289.  
 VONNEGUT et NEUBAUER. --- 1951 *Bull. Am. Met. Soc.*, **32**, **9**, p. 356.  
 WARNER. --- 1957 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **2**, p. 33.  
 WARNER et BIGG. --- 1956 *Bull. Am. Met. Soc.*, **37**, **3**, pp. 94-95.  
 WEBB. --- 1956 *J. of Met.*, **13**, pp. 203-206.  
 WEICKMAN. --- 1951 *Arch. Met. Geophys. u. Biokl.*, **A 4**, pp. 309-323.  
 WEICKMAN. --- 1955 *Bull. Obs. du Puy-de-Dôme*, **2**, pp. 33-36.  
 WEISER. --- 1950 *Colloid. Chemistry*, Chapman et Hall. London, pp. 112-115.  
 WEYL. --- 1950 *J. Colloid Sci. O. N. R. Tech. Rep.*, n° 19.  
 YAMAMOTO et MIURA. --- 1949 *Sc. Rep. of the Tohoku Univ.*, **1**, **2**, pp. 80-82.

## DEUXIÈME THÈSE

---

**Propositions données par la Faculté :**

**« La couche E sporadique ».**

**Vu et approuvé :**

*Paris, le 14 avril 1958.*

Le Doyen de la Faculté des Sciences,

J. PÉRÈS.

**Vu**

**et Permis d'imprimer :**

Le Recteur de l'Académie  
de Paris,

Jean SARRAILH.



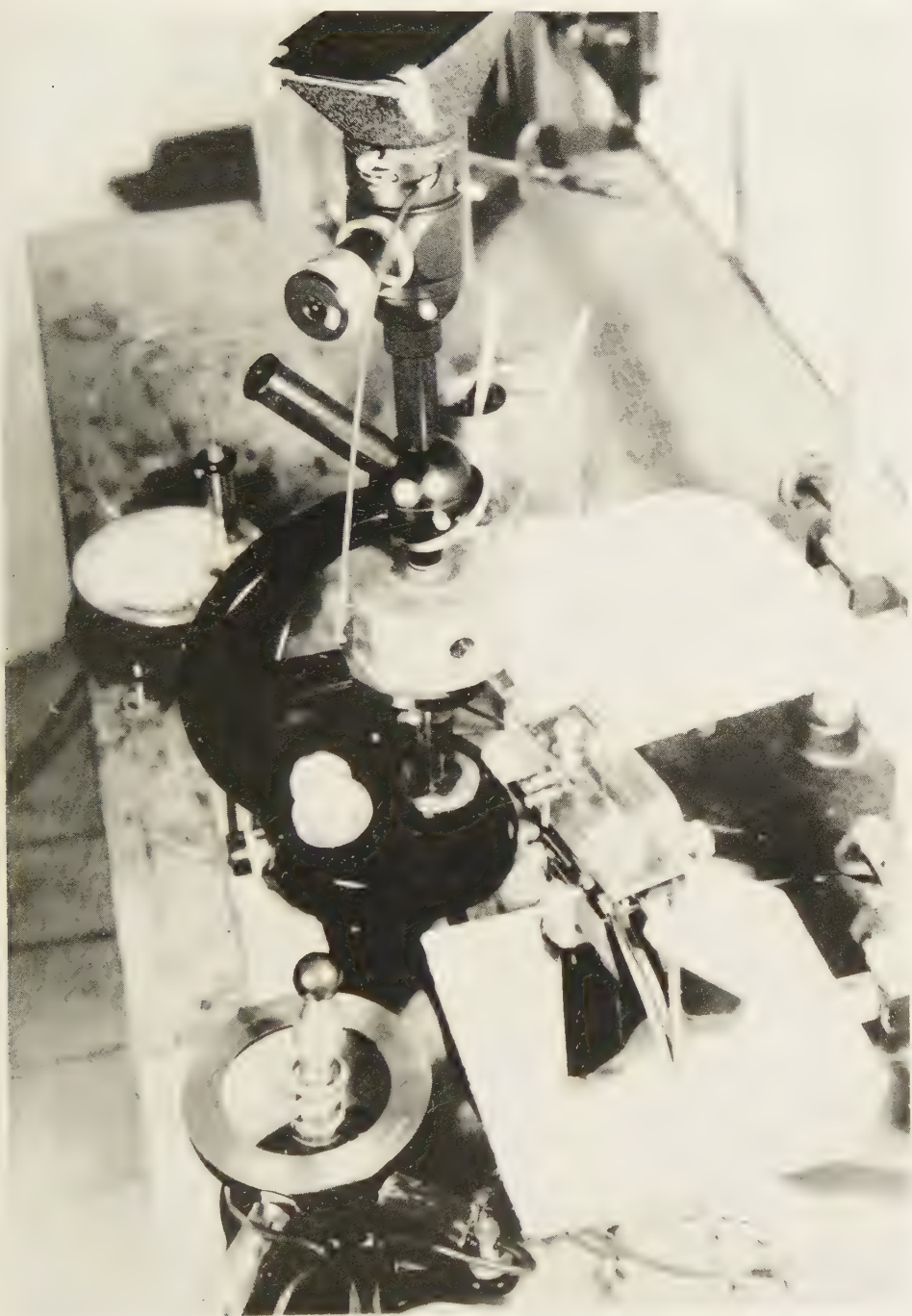


FIG. 1. — Ensemble du dispositif.





FIG. 2. - Gouttes à appendice ( $G : 150$ ).





FIG. 3. — Dispositif expérimental pour l'étude des noyaux sur fils.



EXEMPLES D'HÉTÉROGÉNÉITÉ DE POLLUTION SUR FILS D'ARAIGNÉE.

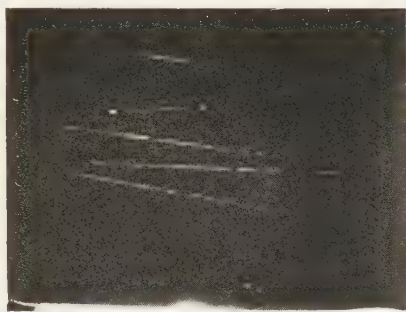
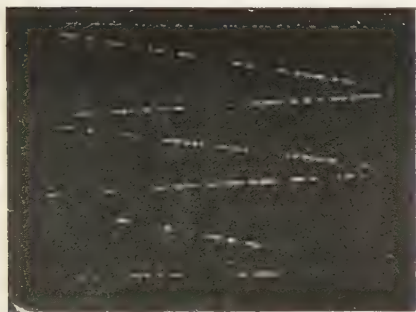


FIG. 4 *a* et 4 *b*. — Fils introduits dans un brouillard à  $-13^{\circ}\text{C}$  et qui avaient été pollués en même temps, dans des conditions identiques.  $G : 0,4$ .

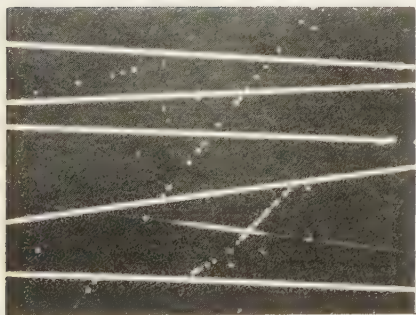


FIG. 5 *a* et 5 *b*. — Aspects différents de fils appartenant à une même grille.  
 $G : 0,75$ .



EXEMPLES DE DÉSACTIVATION DE NOYAUX  
AYANT SUBI UNE CONDENSATION SUIVIE D'ÉVAPORATION DE VAPEUR D'EAU.



FIG. 6 a. — Fils témoins (— 7,5 °C).

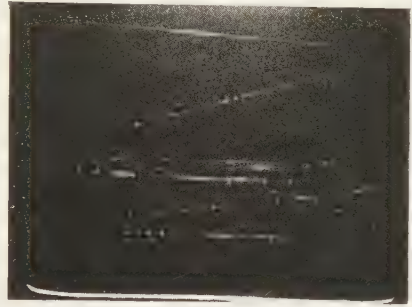


FIG. 6 b. — Fils ayant subi une condensation + évaporation (— 7,5 °C).  
Désactivation : 20 %.



FIG. 7 a. — Fils témoins (— 9,5 °C).



FIG 7. b. — Fils ayant subi une condensation + évaporation (— 9 °C).  
Désactivation : 97 %.

$G : 0,4.$



EXEMPLE DE DÉSACTIVATION DE NOYAUX  
 AYANT SUBI UNE FUSION DE GLACE SUIVIE DE L'ÉVAPORATION DE L'EAU DE FUSION.



FIG. 8 a. — Aspect des fils au cours de la première glaciation ( $-7^{\circ}\text{C}$ ).



FIG. 8 b. — Fils après une fusion + évaporation ( $-7,3^{\circ}\text{C}$ ). Désactivation : 90 %.

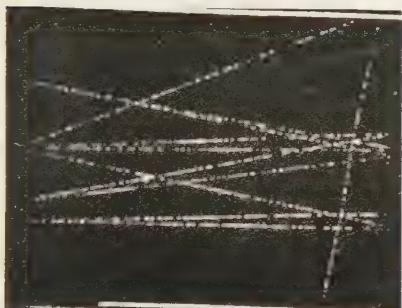


FIG. 9 a. — Aspect des fils au cours de la première glaciation ( $-7^{\circ}\text{C}$ ).

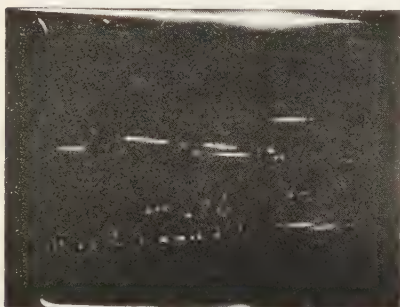


FIG. 9 b. — Fils après une fusion + évaporation ( $-8^{\circ}\text{C}$ ). Désactivation : 92 %.



FIG. 10 a. — Aspect des fils au cours de la première glaciation ( $-8^{\circ}\text{C}$ ).



FIG. 10 b. — Fils après une fusion + évaporation ( $-7,5^{\circ}\text{C}$ ). Désactivation : 81 %.

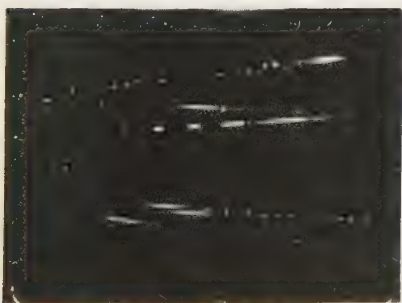


FIG. 10 c. — Fils après deux fusions + évaporation ( $-7,5^{\circ}\text{C}$ ). Désactivation : 73 %.



FIG. 10 d. — Fils après trois fusions + évaporation ( $-7,5^{\circ}\text{C}$ ). Désactivation : 98 %.



EXEMPLE DE DÉSACTIVATION DE NOYAUX AYANT ÉTÉ LE SIÈGE DE SUBLIMATION DE GLACE  
(Les taux de désactivation ont été calculés en tenant compte de la position des cristaux de glace).

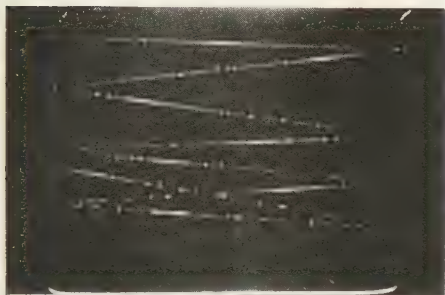


FIG. 11 a. — Aspect des fils au cours de la première glaciation ( $-7,5\text{ }^{\circ}\text{C}$ ).

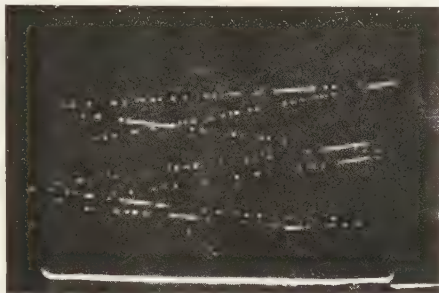


FIG. 11 b. — Après une sublimation de glace. Aspect de la deuxième glaciation. Désactivation : 56 %.



FIG. 12 a. — Aspect des fils au cours de la première glaciation ( $-7,6\text{ }^{\circ}\text{C}$ ).

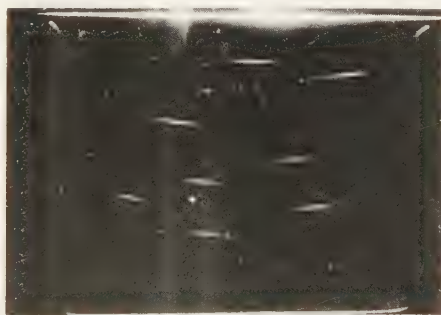


FIG. 12 b. — Après une sublimation. Aspect de la deuxième glaciation. Désactivation : 86 %.

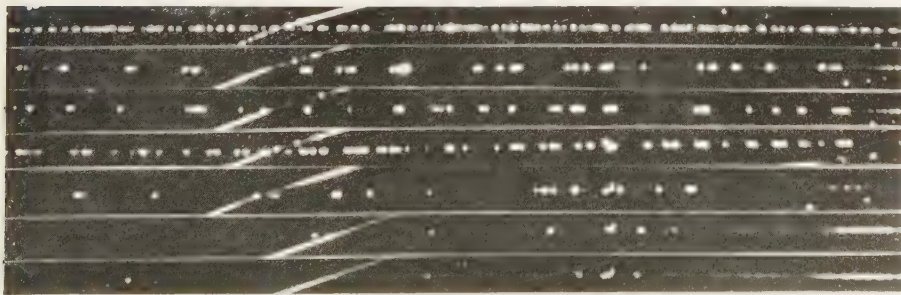


FIG. 13. — Aspect d'un fil au cours de glaciations et sublimations successives



EXEMPLE DE DÉSACTIVATION PAR SUBLIMATIONS SUCCESSIVES DE GLACE SUR LES NOYAUX.

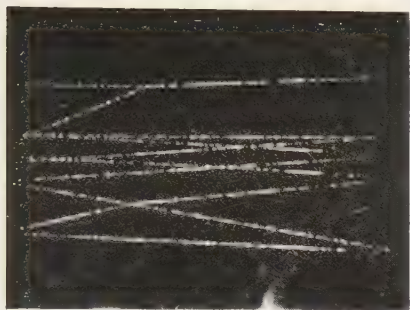


FIG. 14 a. — Première glaciation  
(— 8 °C).



FIG. 14 b. — Après une sublimation  
(— 7,8 °C).



FIG. 14 c. — Après deux sublimations  
(— 8 °C).



FIG. 14 d. — Après trois sublimations  
(— 8 °C).



FIG. 14 e. — Après quatre sublimations  
(— 7,8 °C).



FIG. 14 f. — Après cinq sublimations  
(— 8 °C).



FIG. 14 g. — Après six sublimations  
(— 7,6 °C).



EXEMPLE DE LA DÉCROISSANCE DU POUVOIR GLAÇOGÈNE EN FONCTION DU TEMPS. ASPECT DES GLACIATIONS PRÉSENTÉES PAR QUATRE GRILLES POLLUÉES EN MÊME TEMPS ET INTRODUITES DANS UN BROUILLARD SURFONDU A DES INSTANTS DIFFÉRENTS.

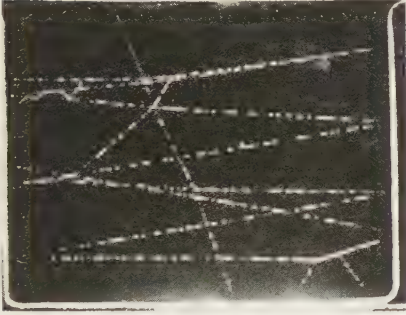


FIG. 15 a. — Introduction des fils dans un brouillard moins d'une minute après leur pollution.



FIG. 15 b. — Fils introduits 10 mn après leur pollution.

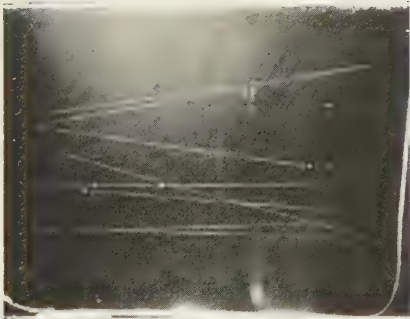


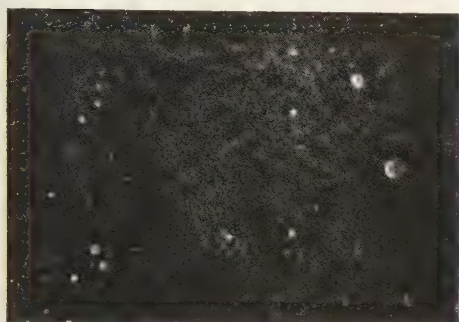
FIG. 15 c. — Fils introduits 20 mn après leur pollution.



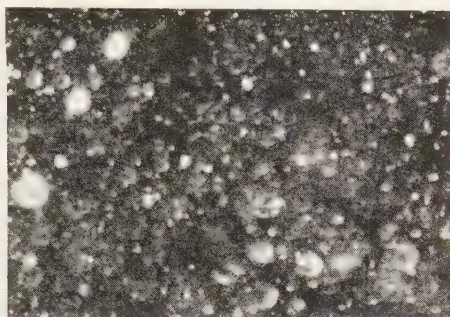
FIG. 15 d. — Fils introduits 30 mn après leur pollution.



FIG. 16. — Exemple de désactivation de fumées libres de IAg ayant séjourné 6 mn dans un brouillard vers 0 °C. Aspect du nuage inséminé (— 14 °C) à des instants différents



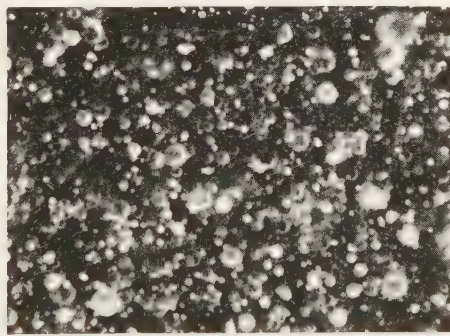
$t : 15 \text{ s}$



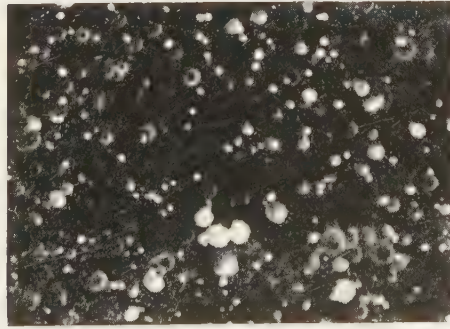
$t : 30 \text{ s}$



$t : 45 \text{ s}$



$t : 60 \text{ s}$



Fumée traitée.

Fumée témoin  
(après un stockage de 31 mn).

$G : 1,5$



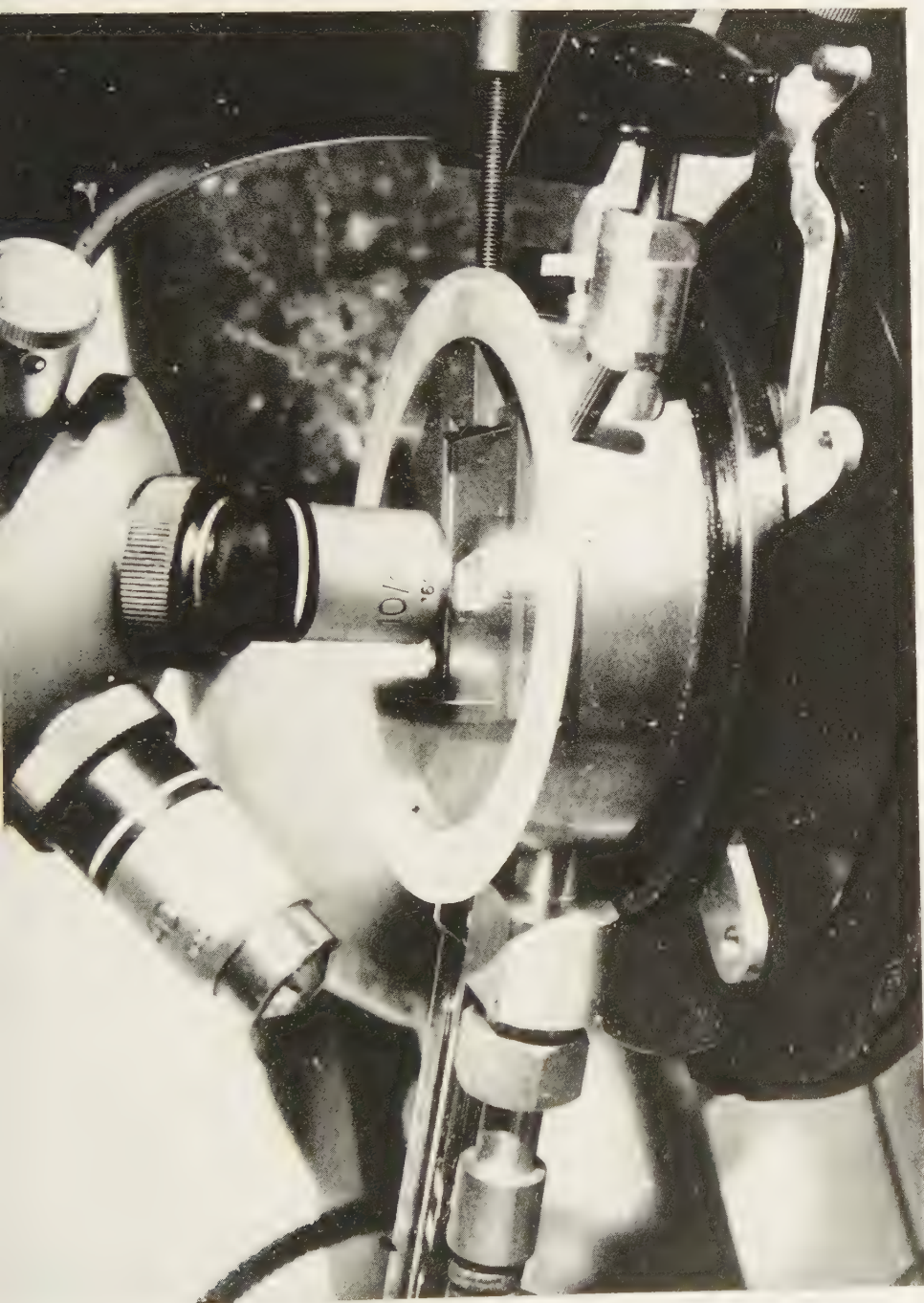


FIG. 17. Platine réfrigérante utilisée pour l'étude de l'activité glaucogène de l'iodure d'argent déposé sur lame de verre.



EFFETS D'UNE CONDENSATION + ÉVAPORATION DE VAPEUR D'EAU SUR UNE FUMÉE D'IAG  
EN PROVENANCE DE CHARBON IMPRÉGNÉ ET DÉPOSÉ SUR LAME DE VERRÉ.

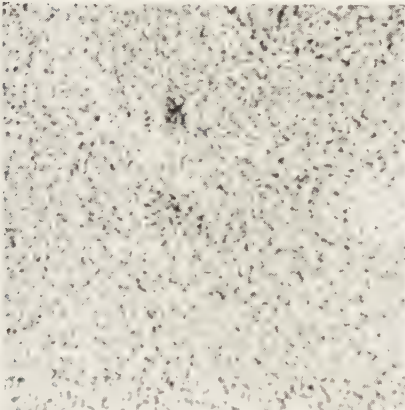


FIG. 18. — Aspect de la fumée fraîche.  
 $G : 600$ .



FIG. 19 a. — Aspect de la lame après  
la condensation + évaporation de la  
vapeur d'eau.  $G : 150$ .

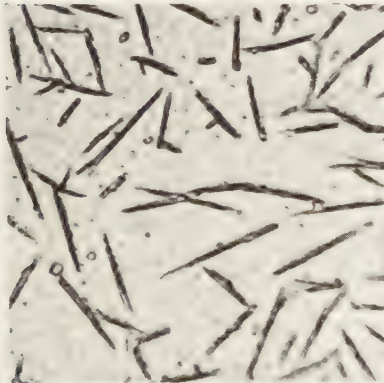


FIG. 19 b. — Même cliché que celui de la  
fig. 19 a, mais avec  $G : 600$ .



FIG. 19 c. — Autre aspect des aiguilles.  
 $G : 600$ .

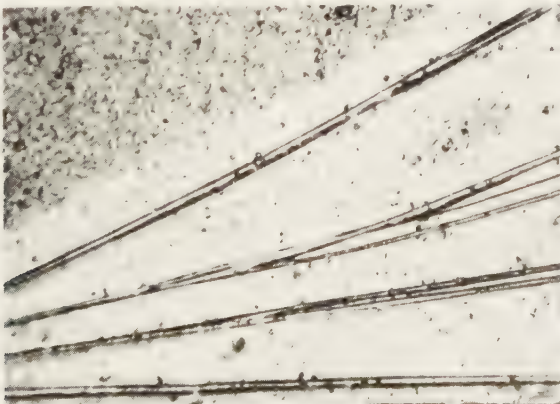


FIG. 20. — Aiguilles apparues spontanément après  
un séjour de 24 h dans l'atmosphère ambiante.  
 $G : 400$ .



EFFETS D'UNE CONDENSATION + ÉVAPORATION DE VAPEUR D'EAU  
ET D'UNE FUSION + ÉVAPORATION SUR UNE FUMÉE D'IAg RECUEILLIE SUR LAME DE VERRE.

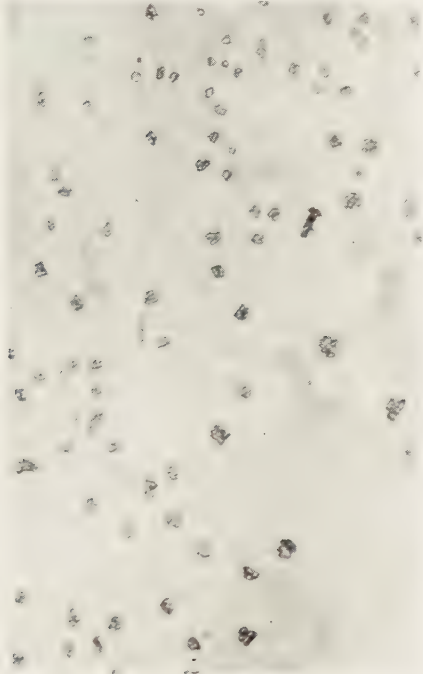


FIG. 21. — Glaciations à  $-14\text{ }^{\circ}\text{C}$  sur une lame recouverte de fumée fraîche.



FIG. 22. — Même pollution de la lame mais la fumée ayant subi une condensation + évaporation de vapeur d'eau à température positive.

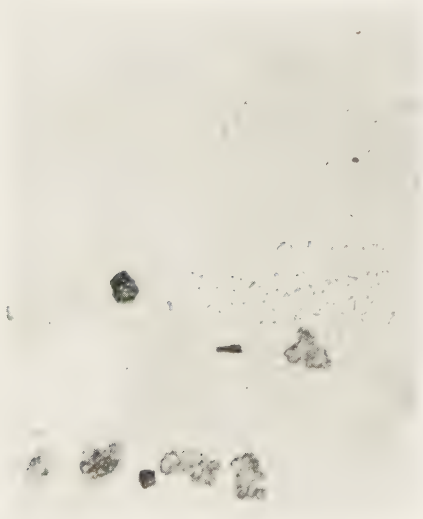


FIG. 23. — Lame polluée de fumée en provenance de charbon imprégné. Après une condensation + évaporation de vapeur d'eau.

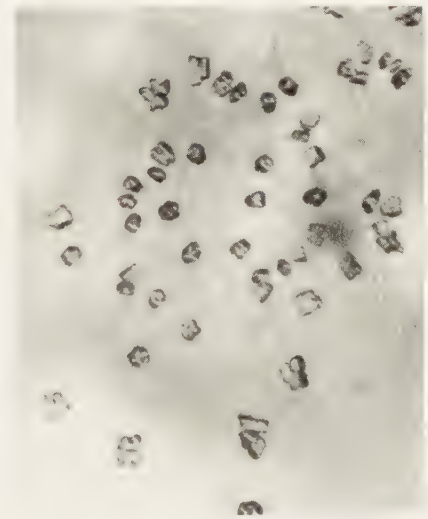


FIG. 24. — Aspect des deuxièmes glaciations sur une lame où les cristaux de glace ont fondu. On voit les traces laissées après l'évaporation de l'eau de fusion.



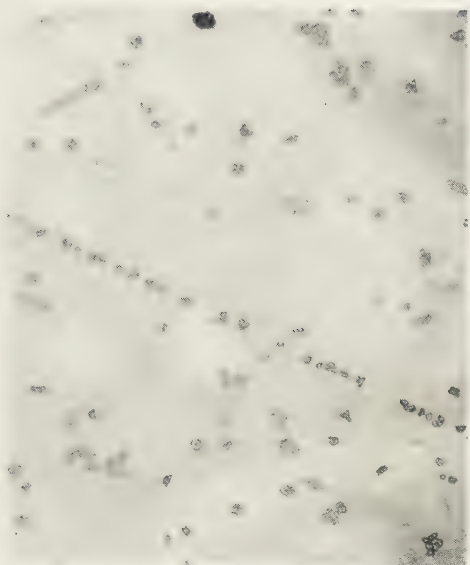


FIG. 25 a. — Glaciations sur une lame enfumée de IAg ( $-14^{\circ}\text{C}$ ).  $G : 75$ . Exemple de localisation des cristaux suivant une droite.



FIG. 25 b. — Après une sublimation de la glace. Deuxièmes glaciations ( $-14^{\circ}\text{C}$ ).  $G : 75$ . Les cristaux réapparaissent sur la même ligne privilégiée.

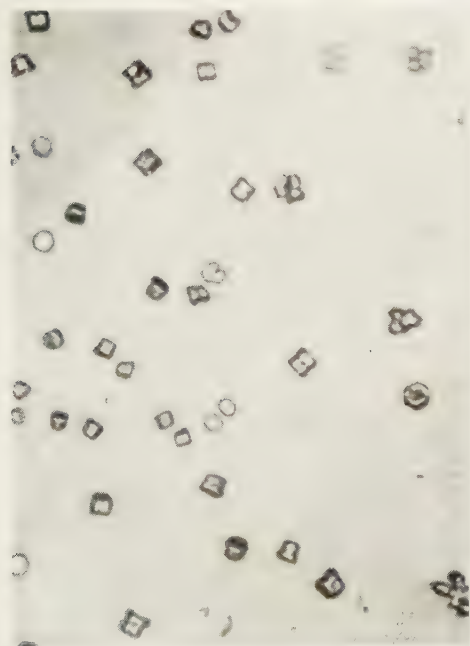


FIG. 26 a. — Premières glaciations sur une lame enfumée de IAg ( $-9^{\circ}\text{C}$ ).  $G : 135$ .

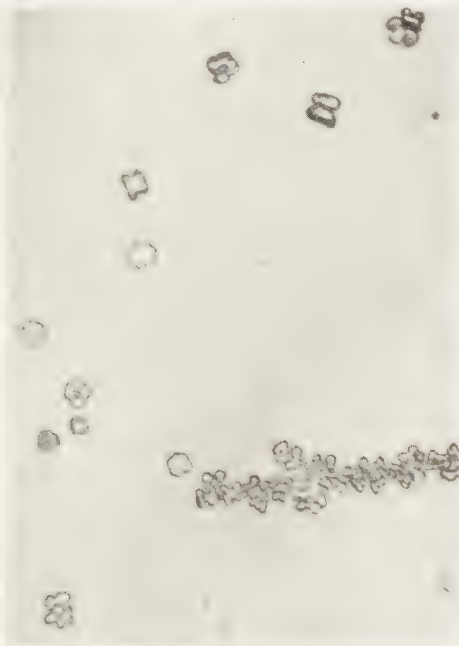


FIG. 26 b. — Après une sublimation des cristaux. Deuxièmes glaciations ( $-9^{\circ}\text{C}$ ).  $G : 135$ . Le repérage des cristaux montre que trois d'entre eux peuvent avoir une position commune.





FIG. 27. — Formation de glace sur des cristaux de IAg à  $-6\text{ }^{\circ}\text{C}$  ( $G : 200$ ).  
Seuls, les gros cristaux ont induit de la glace.



FIG. 28 a. — Premières glaciations sur des cristaux de IAg à  $-12\text{ }^{\circ}\text{C}$ .  
 $G : 150$ .



FIG. 28 b. — Après une fusion + évaporation de la glace, trois cristaux sont restés actifs.  $G : 150$



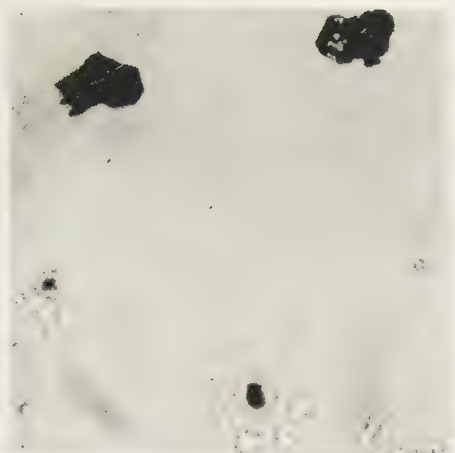


FIG. 29. — Cristaux IAg ayant subi une condensation + évaporation de vapeur d'eau.  $G : 135$ . Désactivation des petits cristaux à  $-12^{\circ}\text{C}$ .



FIG. 30. — Cristaux IAg ayant subi une condensation + évaporation. Désactivation totale à  $-11^{\circ}\text{C}$ .  $G : 135$ .

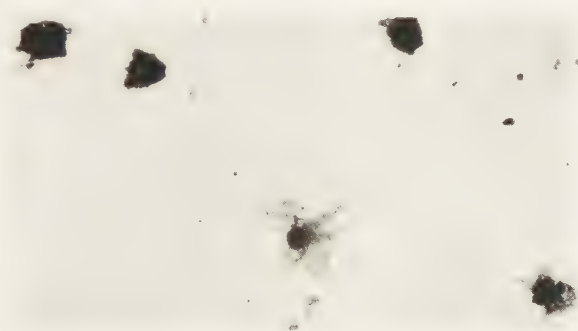


FIG. 31. — Cristaux IAg désactivés après une condensation + évaporation de vapeur d'eau. Action de l'humidité à  $-25^{\circ}\text{C}$ . Deux cristaux sont actifs.  $G : 75$ .

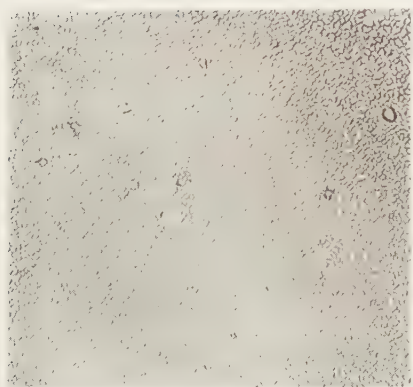


FIG. 32 a. — Aspect d'une lame de verre sur laquelle se condense la vapeur d'eau atmosphérique à  $+10^{\circ}\text{C}$ .  $G : 90$ .

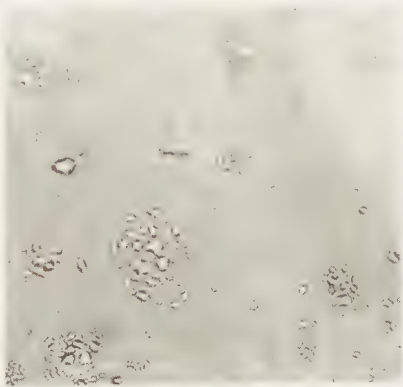


FIG. 32 b. — Après l'évaporation de l'eau condensée : aspect de la deuxième condensation.  $G : 135$ .



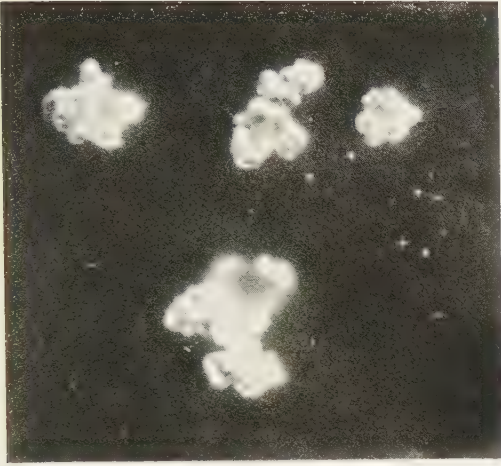


FIG. 33 *a*. — Première action glaçogène de IAg à  $-8^{\circ}\text{C}$ .  $G : 150$ .

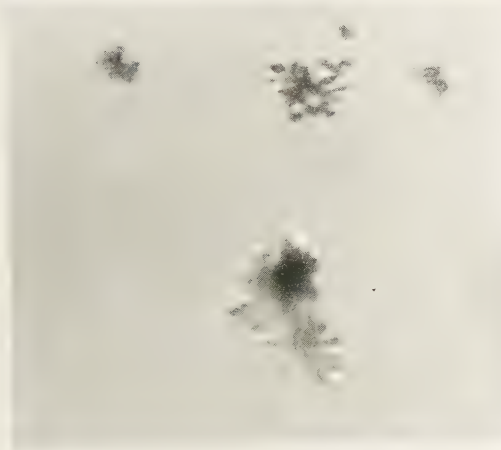


FIG. 33 *b*. — Deuxième action glaçogène après une sublimation de la glace.

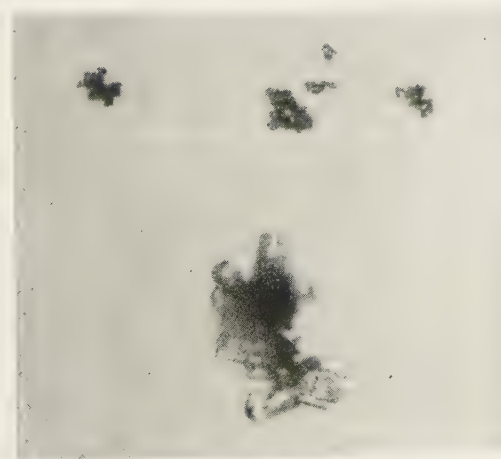


FIG. 33 *c*. — Troisième action glaçogène après une deuxième sublimation.



DÉSACTIVATION DE CRISTAUX D'IAG (LAVÉS) PAR GLACIATION-SUBLIMATION SUCCESSIVES.



FIG. 34 a.  
Premières glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).

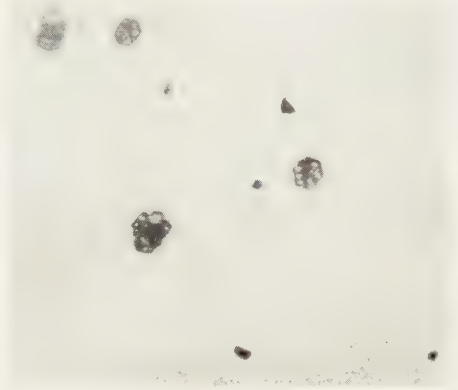


FIG. 34 b.  
Deuxièmes glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).

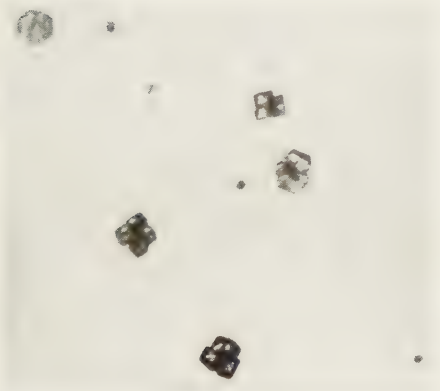


FIG. 34 c.  
Troisièmes glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).

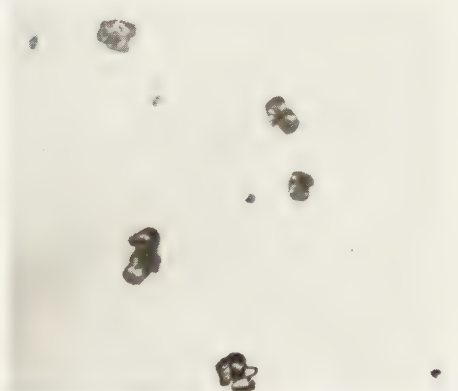


FIG. 34 d.  
Quatrièmes glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).



FIG. 34 e.  
Cinquièmes glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).



FIG. 34 f.  
Sixièmes glaciations ( $-13^{\circ}\text{C}$ ).





FIG. 35 *a*. — Résidus de fusion et d'évaporation de givre amassé sur une lame de verre placée dans un brouillard sur-fondu. *G* : 300.

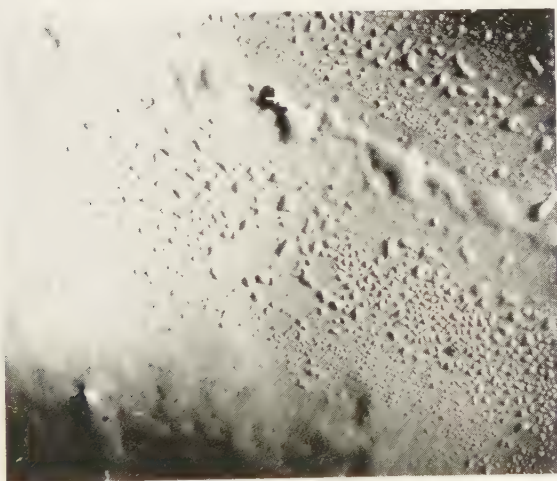


FIG. 35 *b*. — Les résidus se sont dissous dans l'humidité atmosphérique. *G* : 75.

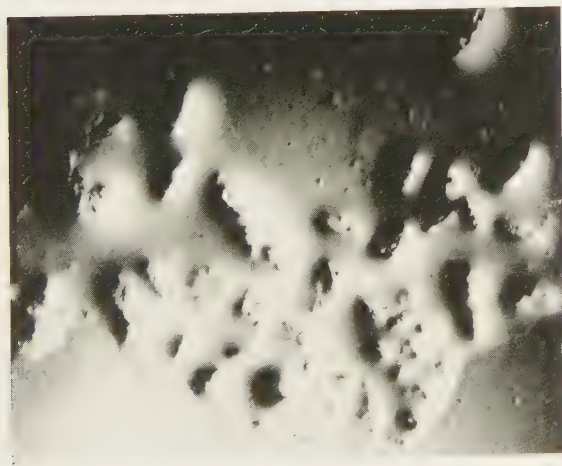


FIG. 36. — Résidus de fusion et d'évaporation de glace recueillie sur la paroi d'une chambre froide. *G* : 75.





FIG. 37 a. — Grosse goutte en voie d'évaporation.  $G : 60$ .

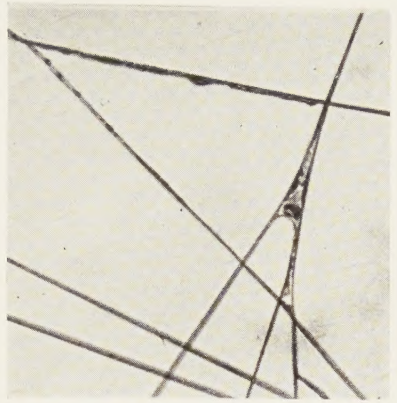


FIG. 37 b. — Aspect des fils après l'évaporation de la goutte.  $G : 150$ .



FIG. 37 c. — Détail des résidus sur l'un des fils.  $G : 500$ .

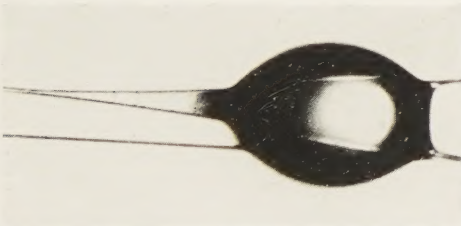


FIG. 38 a. — Goutte en voie d'évaporation (Dimension initiale 1 mm).  $G : 200$ .

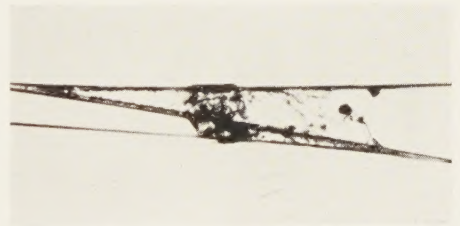


FIG. 38 b. — Résidu laissé après l'évaporation de la goutte.  $G : 200$ .



FIG. 39. — Résidus sur fil d'araignée après la fusion et l'évaporation d'une quantité importante de glace.  $G : 800$ .



FIG. 40. — Fils où se sont évaporées des gouttes d'environ  $10\ \mu$  (microscope électronique).  $G : 4.800$ .



FIG. 41. — Résidus visibles aux points de croisement des fils (microscope électronique).  $G : 375$ .





